

Strahlenschaden in Kaliumchlorid und Oberflächenzerstäubung von Alkalihalogeniden

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Erich Santner

aus Gföhret

- 1976 -



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546604_0042

Strahlenschaden in Kaliumchlorid und Oberflächenzerstäubung von Alkalihalogeniden

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Erich Santner

aus Gföhret

- 1976 -

1. Bericht: Priv.-Doz. Dr. J.P.Biersack

2. Bericht: Prof.Dr.K.-H.Lindenberger

Tag der mündlichen Prüfung:

5. OKT. 1976



<u>Inhaltsübersicht:</u>	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Strahlenschaden bei Channeling-Experimenten	2
2.1 Theoretische Grundlagen	3
2.2 Gegenwärtiger Stand der Bestrahlungs- experimente an Ionenkristallen	11
2.3 Experimenteller Aufbau	13
2.4 Ergebnisse	21
3. Oberflächenzerstäubung	36
3.1 Grundlagen	36
3.2 Übersicht über Alkalihalogenid- Zerstäubung durch Ionenbeschuß	37
3.3 Ergebnisse und Diskussion	39
3.3.1 Mikroskopbeobachtung	39
3.3.2 Rutherfordrückstreu-Experimente	41
3.3.3 Diskussion	54
3.4 Bremsvermögen von KCl	66
3.5 Zusammenhang zwischen Zerstäubung und anomalem Strahlenschadenverlauf	68
4. Zusammenfassung	70
5. Literaturverzeichnis	72

1. Einleitung

Der Strahlenschaden, der bei Beschuß von Alkalihalogenid-Kristallen mit energetischen Ionen in Hauptachsenrichtung trotz des Gitterführungseffektes entsteht, ist bereits von mehreren Autoren untersucht worden / 1 - 8 /.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind jedoch zum Teil sehr widersprüchlich und insbesondere die von einigen Autoren /5-8/ gemessene anomale Zunahme des Gitterführungseffektes während der Bestrahlung mit Heliumionen, die einer Abnahme des Strahlenschadens gleichkommt, konnte bislang nicht erklärt werden. In der vorliegenden Arbeit wird dieser Effekt in Abhängigkeit von der Bestrahlungstemperatur und der Beschußionenart untersucht. Es wird gezeigt, daß der anomale Strahlenschadenverlauf durch das Zerstäubungsverhalten der Alkalihalogenide unter Ionenbeschuß erklärt werden kann.

Die Zerstäubung von Alkalihalogeniden durch schwere Teilchen ist in der Vergangenheit ebenfalls schon durch mehrere Experimentatoren untersucht worden /9-19/. Bis jetzt sind jedoch alle Messungen mit niedrigen Ionenenergien von 0.1 - 40 keV und bei niedriger Targettemperatur durchgeführt worden. Die dabei gefundenen Zerstäubungsraten reichen von 0.1 - 2 Atome pro Ion. In der vorliegenden Arbeit wird zu bedeutend höheren Ionenenergien, wie sie für Kanalführungs-(Channeling) Experimente interessant sind, gegangen und die Temperaturabhängigkeit wird systematisch untersucht. Es sind dies die ersten Zerstäubungsmessungen an Alkalihalogeniden mit H^+ - und He^+ -Ionen. Die Meßergebnisse zeigen, daß die bisherige Erklärung der Zerstäubung von Metallen und Halbleitern nach dem Stoßkaskaden-Modell /48/ auf die Zerstäubung von Alkalihalogeniden nicht anwendbar ist.

2. Strahlenschaden bei Channeling-Experimenten

Channeling-Experimente haben seit der Entdeckung des Effekts in den Jahren 1960 bis 1964 große Bedeutung auf vielen Gebieten der Experimentalphysik gewonnen. Channeling-Techniken werden z.B. erfolgreich angewendet /20/ zur Gitterpositionsbestimmung von Fremdatomen, Messung kurzer Kern-Lebensdauern ($10^{-18} \dots 10^{-17}$ s) Erzeugung polarisierter Teilchenstrahlen und liefern wichtige Erkenntnisse über stoßparameterabhängige Energieverlustprozesse. Zum zweifellos größten Anwendungsgebiet hat sich die Halbleiterphysik entwickelt mit Implantation, Gitterpositionsbestimmung von Dotierungsatomen und Verunreinigungen, Untersuchung von Gitterfehlordnungen und epitaktischen Oberflächenschichten. Seit 1964 sind mehr als hundert Channeling-Untersuchungen an Silicium, über dreißig an Germanium und in jüngerer Zeit auch an GaS und GaP veröffentlicht worden (siehe Literaturverzeichnis in /20/). Auch an Metallen wurden bereits viele Channeling-Experimente durchgeführt. Die meistuntersuchten sind dabei Gold mit ca. 50 Publikationen, Wolfram mit ca. 35 und Kupfer mit ca. 30. Danach folgen Aluminium, Silber, Eisen, Niob, Molybdän, Blei, Platin, Chrom, Vanadium, Rhenium und Palladium. Dagegen gibt es nur eine geringe Anzahl von Channeling-Untersuchungen an Ionenkristallen.

Zur Einführung in die im folgenden beschriebenen Experimente soll eine kurze Beschreibung des Channeling-Effekts gegeben und die dabei auftretenden charakteristischen Größen sollen erläutert werden.

2.1 Theoretische Grundlagen

Treffen energetische, geladene Teilchen einen Festkörper, so kann eine Vielzahl von Wechselwirkungen auftreten, die alle stoßparameterabhängig sind, wie z.B. Rutherford-Streuung, Energieverlust-Prozesse, Röntgenanregung, Kernreaktionen und Sekundärelektronenemission. Ist der Festkörper einkristallin und fällt die Impulsrichtung des geladenen Teilchens fast mit einer Hauptachsenrichtung des Kristalls zusammen, so wird sich seine Bahn beim Passieren der einzelnen Gitterebenen mit hoher Wahrscheinlichkeit nur um einen kleinen Winkel ändern. Für Teilchenbeschuß in einer Kristallhauptachsenrichtung ist diese Wahrscheinlichkeit gewöhnlich größer als 90%. Infolge der periodischen Struktur des einkristallinen Targets wird das Geschossteilchen eine Serie von korrelierten Kleinwinkelstreuungen machen. Das führt zu einem Führungseffekt im Kanal der Atomketten, der die Teilchen zwischen den Atomketten bzw. Atomebenen hin und her oszillieren läßt (Kanalführung oder Channeling). Dadurch werden Nahwechselwirkungen, d.h. kleine Stoßparameter, stark unterdrückt. Eine umfassende theoretische Behandlung der Channeling-Phänomene veröffentlichte 1965 J.LINDHARD /21/. Er führte ein Kontinuumpotential für die statischen Atomketten ein, das nur vom Abstand r von der Kette abhängt:

$$U(r) = \frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{d} \cdot \ln \left(\frac{C^2 \cdot a^2}{r^2} + 1 \right) \quad (1)$$

Dieses Kettenpotential stellt eine Ausschmierung des folgenden Ion-Atompotentials entlang der Atomkette dar:

$$V(r) = \frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{r} \left(1 - \left[1 + \left(\frac{C \cdot a}{r} \right)^2 \right]^{-1/2} \right) \quad (2)$$

Z_1 und Z_2 sind die Atomnummern von Projektil und Target, d ist der Abstand der Atome in der Kette, a der Thomas-Fermi-Abschirmradius und C eine Konstante ($C \approx \sqrt{3}$). Die Annahme eines Kontinuumpotentials $U(r)$ ist jedoch nur berechtigt, solange die Einfallswinkel ψ des Projektils gegen die Atomkette kleiner sind als ein kritischer Winkel ψ_1 , bei dem die kinetische Energie der Teilchen senkrecht zur Kanalachse $E_{\perp} = E \cdot \sin^2 \psi_1$ größer wird als das Kettenpotential $U(r_{\min})$ bei nächster Annäherung:

$$\psi_1 = (2 \cdot Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 / d \cdot E)^{1/2} \quad \text{für } \psi < a/d \quad (3)$$

Das Potential, das ein Teilchen in einem Kristallgitter am Punkt $\vec{r}$ in einer Ebene senkrecht zur achsialen Richtung sieht, ist eine Überlagerung aller Kettenpotentiale:

$$U_s(\vec{r}) = \sum_i U(\vec{r} - \vec{r}_i) - U_{\min} \quad (4)$$

wobei $\vec{r}_i$ die Positionen der Ketten in dieser Ebene sind und $U_{\min}$ eine Konstante, die das Minimum von $U_s(\vec{r})$ zu Null macht.

Ähnliche Ausdrücke ergeben sich für die Potentiale von Atomflächen im Kristall und für den kritischen Winkel im Falle der Führung der Teilchen zwischen diesen Atomflächen (planares Channeling).

In Abb. 1 ist das Schema eines typischen Channeling-Experiments zusammen mit den charakteristischen Größen ψ_1 und $X_{\min}(t)$, die bei diesen Experimenten auftreten, dargestellt. Ein gut kollimierter (paralleler) Ionenstrahl trifft auf einen Einkristall, der auf ein Goniometer montiert ist. Bei dünnen Einkristallen kann man die Energie und die Ortsverteilung des durchgehenden Teilchenstrahls in Detektor 2 in Abhängigkeit vom

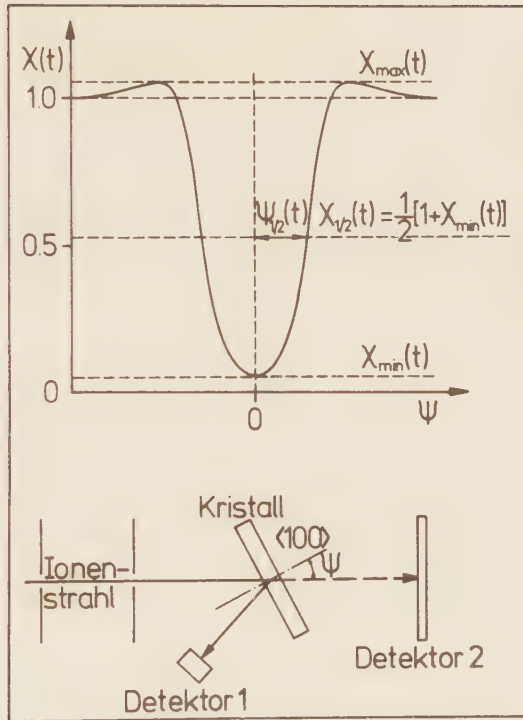


Abb. 1: Schematische Darstellung eines Channeling-Experiments und der charakteristischen Channeling-Größen.
 $\psi_{1/2}(t) = \alpha \cdot \psi_1$, wobei α zwischen 1 und 2 liegt [21].

Einschußwinkel ψ messen. Daraus gewinnt man z.B. Informationen über Energieverlustprozesse und erhält (z.B. auf einem Leuchtschirm) eine Abbildung des Kristallgitters. Das Channeling-Experiment, das auch an dicken Kristallen durchgeführt werden kann und jetzt überwiegend benutzt wird, besteht in der Analyse der Rutherford-Rückstreuung (RRS). Im feststehenden Detektor 1 wird dazu die Rückstreuozählrate in Abhängigkeit vom Winkel zwischen Ionenstrahl und Kristallachse gemessen.

Die Rückstreuozählrate hängt jedoch auch bei fester, willkürlicher Beschußrichtung noch von der Beobachtungsrichtung (Winkel zwischen Detektor 1 und Kristallachse) ab, wenn Detektor D 1 nur einen kleinen Raumwinkel erfaßt. Dieser Effekt, den man Blocking nennt, entsteht durch Abschattung der gestreuten Teilchen durch die Atomketten und Atomebenen des Gitters. Um eine zufällige Überlagerung dieser beiden Winkelabhängigkeiten bei Channeling-Experimenten zu vermeiden, macht man entweder den Raumwinkel, unter dem Detektor 1 das Target sieht, so groß, daß die Abhängigkeit der Zählraten von der Beobachtungsrichtung herausgemittelt wird, oder man bewegt den Detektor 1 mit dem Target mit, so daß die Beobachtungsrichtung bei Drehung des Targets konstant bleibt. In besonderen Fällen kann man aber auch durch geeignete experimentelle Anordnung Channeling- und Blocking-Effekt gleichzeitig ausnutzen (double alignment) und dadurch z.B. die Nachweisempfindlichkeit für die Gitterpositionsbestimmung von Fremdatomen erhöhen.

Bei Channeling-Experimenten, um die es sich im folgenden handelt, ist die normierte, minimale Ausbeute $X_{\min}(t)$ definiert als die RRS-Zählrate aus der Tiefe t bei achsenparallelem Einfall des Teilchenstrahls, normiert auf die Zählrate aus der gleichen Tiefe bei willkürlicher Einfallsrichtung (sogen. "random direction"). Nach dem Kontinuum-Modell wird die normierte, minimale Ausbeute $X_{\min}$ im wesentlichen durch Teilchen bestimmt, die in den Bruchteil $F = \pi \cdot (a^2 - \langle \rho_{\perp}^2 \rangle)$ einer Kanalquerschnittsfläche fallen, in dem auch bei achsenparallelem Teilchenstrahl keine Channeling-Bahnen möglich sind /21/:

$$X_{\min}(0) = n \cdot d \cdot \pi \cdot (a^2 - \langle \rho_{\perp}^2 \rangle) \quad (5)$$

wobei n die Volumendichte und $\langle \rho_{\perp}^2 \rangle$ die mittlere quadratische Auslenkung der Kettenatome senkrecht zur Kette sind. Tatsächlich tragen aber auch Streuprozesse in der Tiefe t zu $X_{\min}$ bei.

Dieser Beitrag wird hauptsächlich durch Stöße der im Kanal geführten Teilchen an thermisch ausgelenkten Gitteratomen und die dadurch bedingte Zunahme der kinetischen Energie der Teilchen senkrecht zur Kanalachse hervorgerufen. $X_{\min}$ kann aus den Energiespektren für Beschuß des Kristalls in Random-Richtung und entlang einer Hauptachse berechnet werden. Der Zusammenhang zwischen der Energie der gestreuten Teilchen und der Tiefe, aus der sie gestreut wurden, ist in Abb. 2 und in Gleichung (6) dargestellt.

$$E(t) = k^2 \cdot (E_0 - \Delta E_1) - \Delta E_2 \quad (6)$$

Darin ist k^2 der Faktor, der den Energieverlust der Teilchen bei der Streuung um den Winkel θ angibt:

$$k = \frac{M_1 \cdot \cos \theta}{M_1 + M_2} + \left[\left(\frac{M_1 \cdot \cos \theta}{M_1 + M_2} \right)^2 + \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \right]^{1/2} \quad (7)$$

ΔE_1 bzw. ΔE_2 ist der Energieverlust der Teilchen auf dem Weg in den Kristall bis zur Tiefe t , in der die Großwinkelstreuung passiert bzw. von dort zurück zur Oberfläche des Kristalls. M_1 und M_2 sind die Massen von Projektil und Targetatom und θ ist der Streuwinkel im Laborsystem.

Der Energieverlust/Weg, dE/dt , setzt sich zusammen aus dem Energieverlust $S_n(E)$, den die Teilchen durch elastische Stöße an den Atomkernen des Targets erleiden (nukleares Bremsvermögen) und dem Energieverlust $S_e(E)$, den sie durch Elektronen-Anregung und -Ionisation erleiden (elektronisches Bremsvermögen).

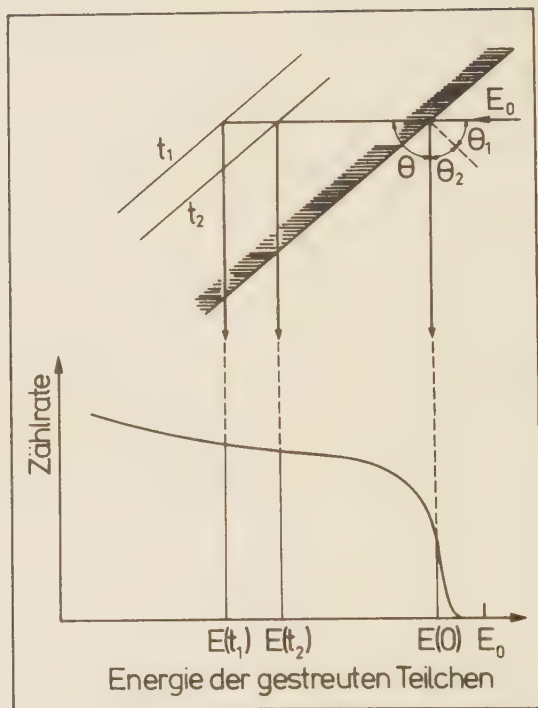


Abb. 2: Schematische Darstellung der Entstehung von Rutherford-Rückstreuenspektren. E_0 ist die Anfangsenergie, θ ist der Streuwinkel im Laborsystem, θ_1 und θ_2 sind die Winkel zwischen der Kristalloberflächennormalen und der Richtung des einfallenden bzw. austretenden Teilchenstrahls, t_1 und t_2 sind die Streutiefen.

Die nukleare Abbremsung $S_n(E)$ läßt sich nach BIRSACK /22/ durch folgende analytische Beziehung berechnen:

$$S_n(E) = \frac{(2 \cdot \pi \cdot a \cdot N \cdot M_1 \cdot Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2) \cdot \ln \epsilon}{(M_1 + M_2) \cdot \epsilon \cdot (1 - \epsilon^{-1.49})} \quad (8)$$

wobei ϵ eine dimensionslose Energie ist,

$$\epsilon = \frac{a \cdot M_2}{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot (M_1 + M_2)} \cdot E$$

Den elektronischen Energieverlust kann man nicht für alle Teilchengeschwindigkeiten mit einer einzigen Formel berechnen. Im Geschwindigkeitsbereich $v < v_0 \cdot Z_1^{2/3}$ geben LINDHARD und SCHARFF /23/ eine geschwindigkeitsproportionale Abbremsung an. Sie betrachten den Abbremsvorgang als den Durchgang eines Teilchens durch ein Fermi-Gas. Ihre Formel lautet:

$$S_L(E) = \frac{8 \cdot \pi \cdot a_0 \cdot (4 \cdot Z_1^{1/6} \cdot Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2)}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \cdot \frac{v}{v_0}, \text{ mit } v_0 = e^2 / \hbar \quad (9)$$

Für den Geschwindigkeitsbereich $v > v_0 \cdot Z_1^{2/3}$ gilt die BETHE-/24/ Formel:

$$S_B(E) = \frac{8 \cdot \pi \cdot Z_1^2 \cdot e^4 \cdot N}{I_0} \cdot \frac{\ln(\epsilon' + 1 + 5/\epsilon')}{\epsilon'} \quad (10)$$

wobei $\epsilon' = \frac{2 \cdot m_e \cdot v^2}{Z_2 \cdot I_0}$ und I_0 die mittlere Ionisierungsenergie ist.

Der Zusatz $(1 + 5/\epsilon')$ im logarithmischen Term von Formel (10) stellt eine Modifizierung der BETHE-Formel dar, die verhindert, daß das Bremsvermögen für kleine Energien negativ wird /25/.

VARELAS und BIRSACK /25/ haben eine Interpolationsformel aus diesen eben beschriebenen Formeln veröffentlicht, die den Energieverlust für den ganzen Geschwindigkeitsbereich einigermaßen richtig wiedergibt:

$$1/S_e(E) = 1/S_L + 1/S_B \quad (11)$$

Diese Formel (11) wurde in der vorliegenden Arbeit verwendet, da hier die Teilchengeschwindigkeiten gerade im Übergangsbereich zwischen dem Gültigkeitsbereich der LINDHARD- und der BETHE- Formel liegen. In diesem Geschwindigkeitsbereich kann $S_e(E)$ nur nach der Interpolationsformel (11) berechnet werden. Mit Hilfe der Formeln (6) bis (11) läßt sich $X_{min}(t)$ aus den gemessenen Energiespektren berechnen.

Die X_{min} -Werte sind ein Maß für die Kristallgüte, da Defekte infolge der durch sie hervorgerufenen Störung des Kettenpotentials den Kanalführungseffekt reduzieren. Nach BØGH /26/ läßt sich der Zusammenhang zwischen dem Strahlenschaden nahe der Kristalloberfläche und dem X_{min} durch folgende Beziehung beschreiben:

$$n' = \frac{X_{min} X_{min}^0}{X_{min}^0} \quad (12)$$

wobei n' die Dichte der Atome ist, die nicht auf regulären Gitterplätzen sitzen, n die Volumendichte der regulären Kristallatome, X_{min}^0 die normierte, minimale Ausbeute für den unbestrahlten Kristall und X_{min} für den bestrahlten Kristall ist. Um Gleichung (12) auch auf größere Tiefen anwenden zu können, müßte man die Wahrscheinlichkeit dafür kennen, daß ein gechanneltes Teilchen den Kanal aufgrund von Gitterschwingungen und Gitterfehlern verläßt. Ferner wäre das sog.

"Fluxpeaking" zu berücksichtigen, d.h. daß die Dichte des Ionenstrahls im Kanal sowohl radial als auch achsial inhomogen ist. Beide Effekte werden jedoch theoretisch nicht so perfekt beherrscht, daß man quantitative Aussagen machen könnte. Aus diesem Grund wird im folgenden auf die Berechnung von Defektkonzentrationen aus den gemessenen $X_{\min}(t)$ -Daten verzichtet und einfach $X_{\min}(t)$ als ein qualitatives Maß für den Strahlenschaden genommen. Diese Vereinfachung ist für die vorliegenden Experimente durchaus zulässig, da nicht die Tiefenverteilung des Strahlenschadens untersucht werden soll.

2.2 Gegenwärtiger Stand der Bestrahlungsexperimente an Ionenkristallen

Es existieren bisher wesentlich weniger Channeling-Untersuchungen an Ionenkristallen als an Metallen und Halbleitern. Als nicht sehr aussagekräftig erwiesen sich dabei die Gitterpositionsbestimmungen von Fremdatomen in Ionenkristallen /27, 28/ im Vergleich zu ähnlichen Experimenten an Metallen und Halbleitern /29-32/.

Insbesondere sind die bis jetzt veröffentlichten Strahlenschaden-Experimente recht widersprüchlich. Es handelt sich dabei durchwegs um Rutherford-Rückstreu-Channeling-Experimente der oben beschriebenen Art. Diese sind im Prinzip experimentell sehr elegant, da der Ionenstrahl, der die Defekte erzeugt, gleichzeitig zum Nachweis dieser Defekte dient. Die ersten Messungen wurden von K. MORITA u.a. /1/, HJ. MATZKE /2/, F. FUJIMOTO u.a. /3/ und von K. OZAWA u.a. /4/ veröffentlicht. Alle diese Autoren haben den Strahlenschaden, den energetische Protonen in Alkalihalogenid-Kristallen erzeugen, untersucht. HJ. MATZKE /2/ berichtet, daß der Channeling-

Effekt in NaCl und KCl bereits bei einer Dosis von ca. $1 \cdot 10^{15}$ Protonen/cm² vollkommen verschwunden ist. Dagegen fanden K. MORITA u.a. /1/, daß der Strahlenschaden in KBr bei ebenfalls dieser Dosis von ca. $1 \cdot 10^{15}$ Protonen/cm² nur einen Sättigungswert erreicht und K. OZAWA u.a. /4/ fanden nicht einmal ein Anzeichen einer Strahlenschadensättigung bei Beschuß all dieser Ionenkristalle mit Protonen bis zu dieser Dosis.

Neuere Publikationen über Strahlenschädigung von Ionenkristallen durch He⁺-Ionen berichten sogar über eine Erholung der Kristalle während der Bestrahlung. M.J. HOLLIS /5/ fand eine deutliche Abnahme der durch 1 MeV He⁺-Ionen in NaCl-Kristallen erzeugten Strahlenschäden beginnend bei einer Dosis von etwa $0,5 \dots 1 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm². Diesen Effekt beobachtete er bei 300 K und auch bei 77 K. Später konnten HOLLIS u.a. /6/ diesen Effekt noch an KCl und an LiF nachweisen. Am auffallendsten war das Verhalten von KCl-Einkristallen. Bei ca. $2 \cdot 10^{16}$ He⁺/cm² begann $X_{\min}$ zu fallen, um bei $1 \dots 2 \cdot 10^{17}$ He⁺/cm² wieder drastisch anzusteigen. P.B. PRICE u.a. /7/ untersuchten daraufhin KCl und NaCl mit 1 MeV Deuteronen und fanden normalen Anstieg, aber keine Abnahme oder Sättigung des erzeugten Strahlenschadens bis zu einer Dosis von ca. $1 \cdot 10^{17}$ Ionen/cm².

Es war bis heute nicht möglich, das Verhalten der Alkalihalogenuid-Kristalle unter Protonen, Deuterium und Heliumbestrahlung stichhaltig zu erklären /8/. M.J. HOLLIS /5/ vermutet aufgrund seiner Messungen, daß ein "komplexer Erholungsmechanismus" oder ein "Defektumorientierungsprozess" der Halogenzwischengitteratome vorliegt. P.B. PRICE u.a. /7/ schließen aus den experimentellen Befunden, daß nur Edelgasionen eine Abnahme von $X_{\min}$ mit zunehmender Bestrahlungsdosis hervorrufen können.

Nachdem eigene Voruntersuchungen eine interessante Temperaturabhängigkeit des Verlaufs von $X_{\min}$ mit der Dosis zeigten,

wurde in dieser Arbeit eine systematische Untersuchung der Temperaturabhängigkeit dieses Effekts mit dem Ziel durchgeführt, die grundlegende Ursache des "Erholungsmechanismus" aufzuklären.

2.3 Experimenteller Aufbau

Zur Durchführung der geplanten Experimente wurde ein 350 keV-DANFYSIK-Schwerionenbeschleuniger benutzt und eine Streukammer für Channeling-Experimente entwickelt. Nach Aufstellung des Beschleunigers durch die Herstellerfirma waren noch umfangreiche Justierarbeiten am Strahlführungssystem im Hinblick auf die geplanten Channeling-Experimente erforderlich. Die Abb.3 zeigt eine Übersicht der gesamten Anordnung. Der linke Bildteil zeigt den Massenseparator mit Nachbeschleunigungsstrecke, und rechts ist das Strahlführungssystem zu sehen. Die Massentrennung erfolgt in einem 90° Magneten nach der Extraktion der Ionen aus der Ionenquelle mit einer Auflösung von $\Delta M/M = 1/500$. Dahinter werden die separierten Ionen in einer Kaskade auf maximal 350 keV nachbeschleunigt. Die Energieanzeige wurde durch Resonanzreaktionen $F^{19}(p,\alpha\gamma)$ O^{16} bei $340,5 \pm 0,2$ keV und $B^{11}(p,\gamma) C^{12}$ bei $163,1 \pm 0,5$ keV geeicht. Nach der Beschleunigung auf die gewünschte Endenergie wird der Ionenstrahl durch einen Schaltmagneten (SM) über das Strahlführungssystem mit elektrischen Quadrupolen (EQ) in die 75 cm Ø-Streukammer (STK) gelenkt. In der Streukammer befindet sich das Goniometer, die Ionenstromkontrolleinrichtung mit Blende, Faradaybecher und rotierendem Flügelrad, und die Teilchendetektoren. Diese Einbauten der Streukammer sind in Abb.4 dargestellt. Der Detektor D und der Vorverstärker VV können als Einheit von außen gesteuert werden. Schwenken um das Target herum und Verschieben in der Vertikalen erlauben die Einstellung fast jedes Winkels zum Kristall.

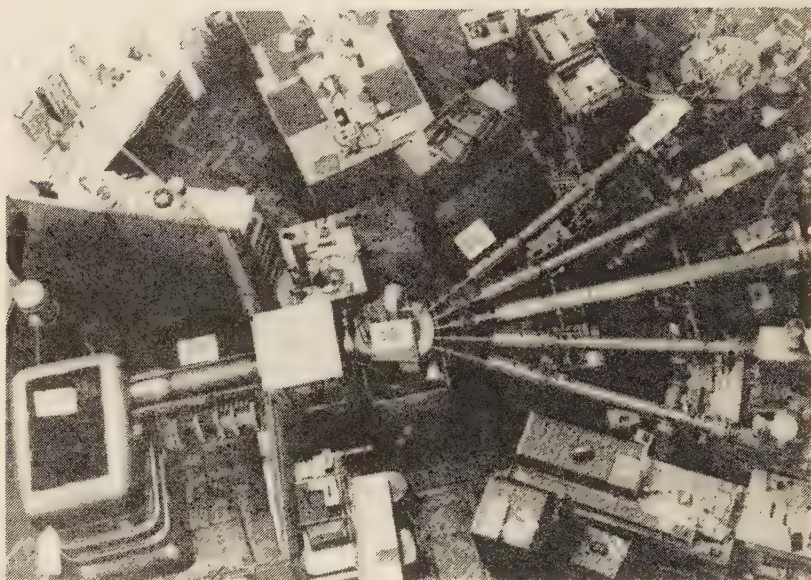


Abb. 3: Beschleunigeranlage und verwendete Streukammer (STK). (IQ) bezeichnet den Ort der Ionenquelle, (SEP) den Separator-Magnet, (NB) die elektrostatische Nachbeschleunigungsstrecke, (SM) den Schaltmagnet und (EQ) die elektrischen Quadrupole zur Strahlführung.

Das erschließt die Möglichkeit von Blocking-Messungen und die optimale Streuwinkeleinstellung für bestmögliche Energieauflösung. Von Hand kann noch die Entfernung zum Target verändert werden (= Änderung des Raumwinkels)

Das ganze System wird mit Turbomolekularpumpen evakuiert. Zusätzlich ist das Goniometer mit Target von Kühlblechen umgeben, die auf Flüssigstickstoff-Temperatur gehalten werden. Die Kühlbleche haben Aussparungen für den ankommenden und den zurück gestreuten Ionenstrahl. Dadurch werden Ab-

lagerungen von z.B. Kohlenwasserstoffen auf der Kristalloberfläche weitgehendst vermieden. Eine Stunde nach Targeteinbau können mit diesem System ca. $1 \cdot 10^{-9}$ bar erreicht werden.

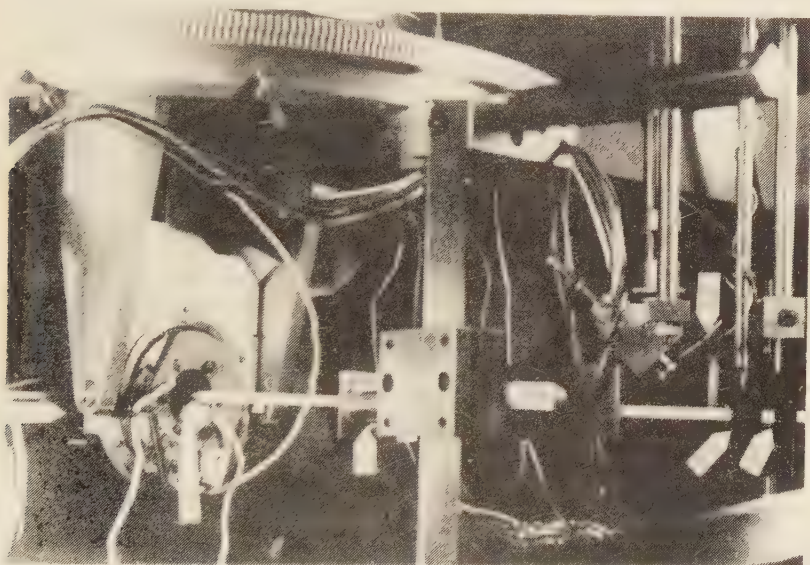


Abb. 4: Dieses Photo zeigt die Einbauten der Streukammer. (BL) Blende von 0,8 mm $\varnothing$, (FB) Faradaybecher, (FR) Flügelrad, (VV) Vorverstärker, (D) Oberflächensperrschichtdetektor, (KR) Kristall, (GON) Goniometer und (HE) Heizung.

Eine schematische Darstellung des eigentlichen Experiments gibt Abb.5 wieder. Blende 1 und Blende 2 definieren einen Ionenstrahl mit einer Divergenz von ca. $0,04^\circ$, eine ausreichende Parallelität bei einem kritischen Winkel ψ_1 von etwa 2° für die geplanten Bestrahlungen von KCl mit 300 keV H^+ - und He^+ -Ionen. Hinter der Blende 2 trifft der Ionenstrahl auf ein rotierendes Flügelrad aus Aluminium, das mit einer dünnen Goldschicht von ca. 500 Å bedampft ist. Die Ionen, die von dieser Goldschicht zurückgestreut werden, werden in

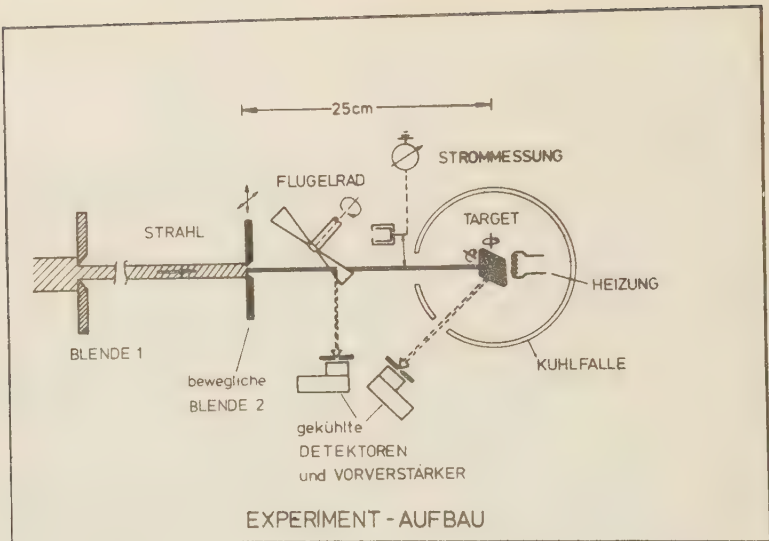


Abb. 5: Schematische Darstellung des Channeling-Experiment-Aufbaus.

einem Oberflächensperrschicht-Detektor nachgewiesen und dienen als Maß für den Ionenstrom während der Bestrahlungen. Mit einem in den Ionenstrahl schwenkbaren Faradaybecher, der an einen Analog-Digital-Konverter angeschlossen ist, wird die absolute Größe des Ionenstroms gemessen und die Flügelrad-Rückstreuozählrate geeicht. Das ist eine bewährte Methode der Strommessung bei Bestrahlungsexperimenten an nichtleitenden Targets /33,34,35/. Blende 2, Flügelrad, Detektor und Faradaybecher können als eine Einheit in der Ebene senkrecht zum Ionenstrahl verstellt werden. Diese Konstruktion ermöglicht es, auf einem Target mit etwa 7 mm $\varnothing$ mehrere verschiedene Positionen nacheinander zu beschießen, da Blende 2 und damit der Ionenstrahl nur 0,8 mm Durchmesser hat. Für Channeling-Experimente an Alkalihalogeniden ist eine derartige Technik unbedingt erforderlich, um nach dem Ausrichten des

Kristalls eine unbestrahlte Stelle des Kristalls für das eigentliche Strahlenschadenexperiment zur Verfügung zu haben. Eine Änderung der Strahlposition auf dem Target um 5 mm bewirkt eine Änderung des Winkels zwischen Kristallachse und Strahlrichtung von $0,1^\circ$. Diese Richtungsänderung ist bei der Größe des kritischen Winkels ψ_1 noch akzeptabel und beeinträchtigt das Channeling-Verhalten der Ionen nicht.

Die verwendeten Kristalle wurden alle von $1 \times 1 \times 1$ cm Würfeln der Fa. MRC abgespalten und die frischgespaltenen Flächen dem Ionenstrahl zugewandt ins Goniometer eingebaut. Das verwendete Dreiachsgoniometer wurde von der Fa. McLEAN, England hergestellt und hat eine Einstellgenauigkeit von $\pm 0,01^\circ$ für alle drei Achsen. Der Kristall kann damit um den Ionenstrahl und die Vertikale 360° und um die andere horizontale Achse senkrecht zum Strahl $\pm 30^\circ$ gedreht werden. Die Goniometerachsen werden durch Schrittmotore angetrieben, die elektronisch angesteuert werden. Auf der Targetrückseite ist am Goniometer eine Widerstandsheizung montiert, durch die das Target auf ca. 1000 K erwärmt werden kann. Die Temperatur wird durch ein Thermoelement (Chromel-Alumel) gemessen. Da dieses Thermoelement auf der Rückseite des Targets montiert werden muß, wird nach jeder Temperatureinstellung etwa 10 min. gewartet, bis auch die Targetvorderseite sicher die angezeigte Temperatur erreicht hat. Die spielfrei laufenden Hypoid-Schneckengetriebe des Goniometers sind durch ein System von Hitzeschilden um den Glühfaden und durch thermisch isolierte Montage des Targets vor Beschädigung bzw. Fressen geschützt.

Zur Spektroskopie der gestreuten Teilchen werden Oberflächen-sperrschichtdetektoren verwendet. Ihre Energieauflösung wurde dadurch erhöht, daß sie direkt auf die Vorverstärker aufgesteckt sind und zusammen mit diesen gekühlt werden. Die Kühlung erfolgt durch Verbindung mit der Targetkühlfalle über flexible

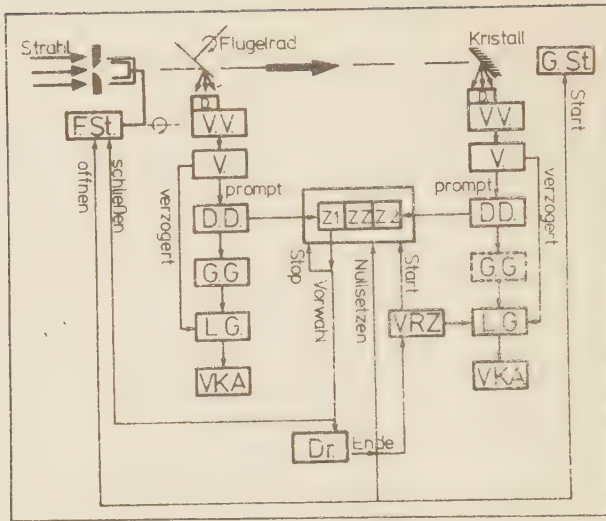


Abb. 6: Verschaltung der verwendeten MeBelektronik. (F.St.) Faradaybecher Steuerung, (G.St.) Goniometer Steuerung, (D.) Detektor, (V.V.) Vorverstärker, (V.) Verstärker, (D.D.) Differential Diskriminator, (G.G.) Gate Generator, (L.G.) Lineares Gate, (VKA) Vielkanalanalysator, (Dr.) Drucker, (VRZ) Verzögerung, (Z1,Z2) Impulszähler, (ZZ) Zeitähler.

Kupferlitzen. Dadurch war es möglich die Energieauflösung z.B. für 6 MeV α -Teilchen auf 9 keV Halbwertsbreite zu senken. Die Energieauflösung für 300 keV He^+ war ca. 8 keV und für 300 keV H^+ ca. 4 keV. Vom Hersteller (ORTEC) angegeben waren 16 keV. In Abb.6 ist das Schema der verwendeten Elektronik dargestellt.

Ein Bestrahlungsexperiment läuft folgendermaßen ab:
Der gewünschte Teilchenstrahl wird im Faradaybecher nachgewiesen und die Elektronik zur Strommessung geeicht. Dazu wird ein Energiespektrum der vom Flügelrad gestreuten Teilchen über Detektor 1 aufgenommen. Am Differential Diskriminator

(D.D.) wird ein Energiefenster so gesetzt, daß nur die von der Goldschicht des Flügelrades gestreuten Teilchen im Zähler (Z1) registriert werden. Die Umrechnung der Zählrate in Ionenstrom geschieht durch Strommessen mit dem Faradaybecher.

Bei Nullstellung der zum Ionenstrahl (X-Richtung) senkrechten Drehachsen des Goniometers ist die $\langle 100 \rangle$ -Achse des Kristalls bereits etwa parallel zur Strahlrichtung, da die verwendeten Kristalle entlang (100)-Ebenen spalten. Zur exakten Ausrichtung werden die Kristallebenen, die die $\langle 100 \rangle$ -Richtung bilden, in kleinen Winkelschritten durch den Ionenstrahl gedreht und für jede Stellung des Goniometers die zugehörige Rückstreuungszählrate in Zähler Z2 registriert und durch den Drucker Dr. ausgegeben. Um ausgeprägtere Effekte, d.h. tiefere Zählratenminima für Parallelität von Ionenstrahl und Kristallebene (planarer Channeling-Effekt) zu erhalten, wurde mit Hilfe des Differential Diskriminators D.D. ein Energiefenster so gesetzt, daß nur Teilchen, die aus einer Oberflächenschicht des Kristalls von ca. $0,25 \mu$ Tiefe stammen, in Zähler Z2 registriert werden. Der Ausrichtvorgang läuft danach wie folgt ab: Der Kristall wird um die Z-Achse $+2^\circ$ gekippt und um die Y-Achse $+3^\circ$. Durch Starten der Zählersteuerung gibt der Faradaybecher den Ionenstrahl auf das Target frei, und Zähler Z2 sammelt so lange Pulse, bis Zähler Z1 (Stromintegrator) eine vorgewählte Pulszahl erreicht hat. Der Vorwählpuls schließt den Faradaybecher und startet den Drucker. Druckende (Puls) startet die Goniometer Steuerung, die den Kristall in der Y-Achse um $-0,2^\circ$ weiterdreht, und schwenkt den Faradaybecher aus dem Ionenstrahl. Die Zähler werden ca. 0,2 sek. verzögert ebenfalls durch diesen Puls gestartet. Die Verzögerung ist eingebaut, um zu vermeiden, daß am Faradaybecherrand gestreute Teilchen im Zähler Z2 mitgezählt werden. Dieser Vorgang wiederholt sich nun solange, bis die Y-Achse auf etwa -3° steht, d.h. die Kristallebenen (100), (110) und (010) durch den Ionenstrahl geschwenkt sind. Ein ähnlicher Y-Schwenk wird bei der Z-Achsenposition -2° durch-

geführt. Trägt man nun die Zählraten für die einzelnen Schwenks über den zugehörigen Winkeln auf, wie das in Abb.7 getan ist, und verbindet die zu einer Ebene gehörenden Zählratenminima aus Schwenk $+2^\circ$ und Schwenk -2° , so ergibt der Schnittpunkt dieser Verbindungslinien die exakte Position der $\langle 100 \rangle$ -Kristallachse. Aus Abb.7 entnimmt man

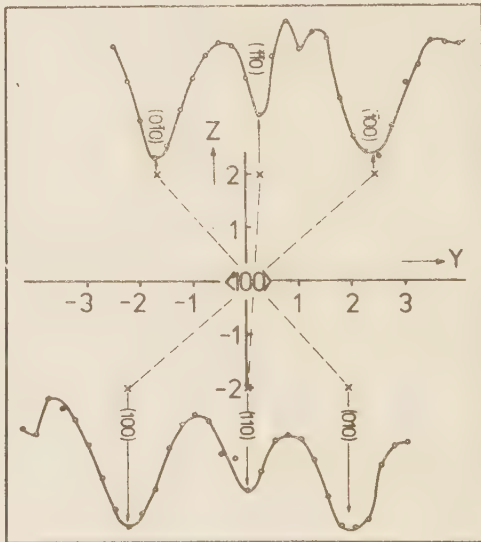


Abb. 7: Abhängigkeit der Rückstreuozählraten vom Winkel zwischen Strahlrichtung und den Kristallebenen. Die Achseneinteilung ist in Winkelgrad. Die $\langle 100 \rangle$ -Achse steht in diesem Beispiel bei folgender Winkelstellung der Goniometerachsen parallel zum Ionenstrahl: $X = 0^\circ$, $Y = +0,15^\circ$, $Z = +0,03^\circ$ und eine Random-Richtung wäre: $X = 0^\circ$, $Y = +4^\circ$, $Z = +2^\circ$.

auch die Winkelstellung, die am besten einer Random-Beschußrichtung entspricht. In dieser Position wird das erste Energiespektrum im Vielkanalanalysator aufgenommen, das sog.

Random-Spektrum. Dieses Spektrum wird zur Berechnung von $X_{\min}(t)$ benötigt. Nach Aufnahme des Random-Spektrums wird Blende 2 so verstellt, daß der Ionenstrahl eine unbeschossene Stelle des Kristalls trifft. Am Goniometer werden die Winkelpositionen eingestellt, die der in Abb.7 gefundenen Richtung der $\langle 100 \rangle$ -Kristallachse entsprechen. Das bedeutet, die Kristallachse wird parallel zum Ionenstrahl gestellt. In dieser Position und mit der eben beschriebenen Elektronik wurden die Kristalle mit Helium bzw. Wasserstoff bis zu Dosen von $1 \cdot 10^{17}$ Ionen/cm² bestrahlt. Die automatische Ansteuerung des Goniometers ist dabei ausgeschaltet. Um $X_{\min}(t)$ kontinuierlich mit zunehmender Bestrahlungsdosis zu verfolgen, müssen möglichst viele Energie-Rückstreuenspektren bei Beschuß parallel zur $\langle 100 \rangle$ -Richtung aufgenommen werden. Für jedes Energiespektrum muß mindestens bis zu einer Dosis von $1 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² bestrahlt werden, um eine ausreichende Statistik zu erhalten. Nach Bestrahlungsende wird ein Random-Spektrum zu Vergleichszwecken aufgenommen. Die gemessenen Energiespektren werden über einen schnellen Lochstreifenstanzer ausgegeben. In dieser Zeit muß die Bestrahlung kurz unterbrochen werden. Zu jeder Targettemperatur und jeder Beschußionenart sind ca. 50 Spektren aufgenommen worden. Die Stromdichte betrug bei allen Bestrahlungen etwa $1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$.

2.4 Ergebnisse

Abb.8 zeigt typische Rückstreuenspektren für den Beschuß von KCl-Einkristallen mit 300 keV He⁺-Ionen. Beim $\langle 100 \rangle$ -Spektrum in Abb.8 sind deutlich die beiden Stufen für Streuung der He⁺-Ionen an Chlor- bzw. an Kaliumatomen zu sehen. Die Kanalnummern wurden durch Aufnahme mehrerer Random-Spektren bei verschiedenen Energien E_0 in eine Energieskala umgerechnet.

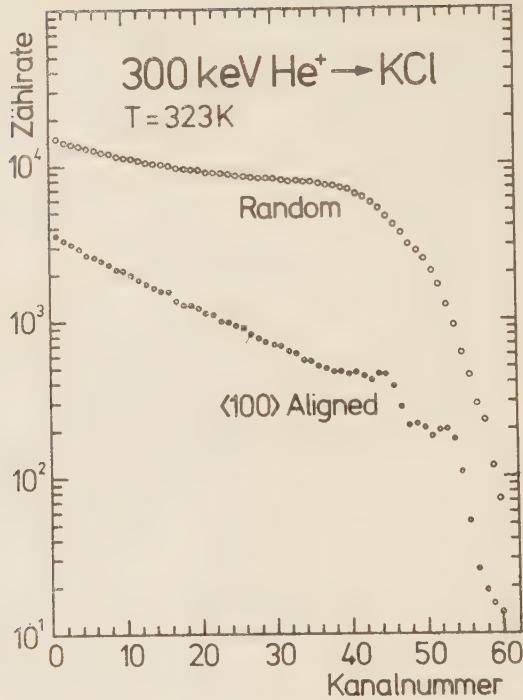


Abb. 8: Rückstreuenspektren von KCl bei Beschuß mit 300 keV He⁺ in Random- und in <100>-Richtung. Der Energienullpunkt ist elektronisch unterdrückt.

net. Bei bekannter Anfangsenergie E_0 ergibt sich für die Energie der an der Oberfläche gestreuten Teilchen, die der Kantenmitte im Spektrum entspricht, aus Gleichung (6) auf S.7 : $E(t=0) = k^2 \cdot E_0$. Nach Gleichung (6) kann, bei bekanntem Energieverlust/Wegeinheit $S(E)$, auch jeder Rückstreuenergie des Spektrums eine Tiefe zugeordnet werden, in der das Teilchen gestreut wurde. $S(E)$ wurde dazu nach den analytischen Formeln (9) und (12) von BIRSACK /22,25/ berechnet. Derartige Formeln beschreiben jedoch den Energieverlust nur in

amorphen Bremsmedien. Für eine Teilchenbahn entlang einer Random-Richtung kann man diese Formeln also anwenden. Bewegt sich ein Teilchen aber im Kanal eines Kristallgitters, so wird die Abbremsung bedeutend kleiner sein, da es sich in einer geringeren Elektronendichte bewegt und auch die Abbremsung durch Stöße an den Atomkernen wegen der relativ großen Abstände zu diesen klein ist. M. MANNAMI u.a. /36/ haben das Verhältnis des Bremsvermögens von KCl für die beiden Fälle experimentell zu 0,45 bestimmt. Mit diesem Wert wurde in der vorliegenden Arbeit $S_1(E)$ korrigiert, da der erste Term ΔE_1 in Gleichung (6) den Energieverlust der Ionen auf dem Weg in den Kristall hinein entlang des $\langle 100 \rangle$ -Kanals beschreibt. Die Gleichung (6) wurde numerisch gelöst. Dazu wurde pro 1 keV Energieverlust des Teilchens nach den Formeln (9) und (12) das dazugehörige Tiefenintervall berechnet. Von der Tiefe des Rückstreuortes wurde das Teilchen wieder in 1 keV-Schritten bis zur Kristalloberfläche zurückverfolgt. Durch Aufsummieren der einzelnen Teilstrecken ergeben sich die zu den Rückstreuenergien gehörenden Eindringtiefen. Die $X_{\min}(t)$ -Werte wurden ebenfalls mit dem Computer errechnet, da man nicht Zählraten von Teilchen mit gleicher Rückstreuenergie im Random- und im $\langle 100 \rangle$ -Spektrum vergleichen kann. Teilchen, die entlang eines Kanals oder einer Ebene in den Kristall bis zur Tiefe t gelangt sind, haben bedeutend höhere Energie als solche, die in einer Random-Richtung bis zu dieser Tiefe gelangt sind. Unterschiedliche Energie bedeutet aber auch unterschiedliche Rutherford-Streuquerschnitte. Deshalb wurden zur Bestimmung von $X_{\min}(t)$ Zählraten verglichen, die zur gleichen Energie E_s während des Streuprozesses gehören:

$$X_{\min}(t) = \frac{Y_{100}(E_s, t)}{Y_R(E_s, t')} \quad (13)$$

Das Suffix 100 bedeutet achsenparallelen und das Suffix r Random Einfall der Ionen.

Eine Reihe derartig normierter Spektren $X_{\min}(t)$ für zunehmende Bestrahlungsdosen (1,2,3,4,5) ist in Abb.9 aufgetragen. Wie man sieht, steigt $X_{\min}(t)$ nicht kontinuierlich mit der Dosis D. Dieser Effekt ist in Abb.10 für verschiedene Tiefen in anschaulicherer Form wiedergegeben. Die Daten für die Tiefe 0 sind aus Auftragungen der Art von Abb.9 extrapoliert. Derartige Auftragungen (Abb.9) wurden für jedes gemessene Energiespektrum am Computer erstellt. Um die gemessenen $X_{\min}(t)$ -Werte mit theoretischen Werten (s.S.6 Gl.(5)) vergleichen zu können, wurden auch die $X_{\min}(D)$ -Darstellungen für die Tiefe 0 μ mit Hilfe einer linearen Darstellung auf die Dosis Null extrapoliert. Diese Werte sind in Abb.11 mit theoretischen Werten von LINDHARD /23/ und BARRETT /37/ verglichen. Die von LINDHARD in Gleichung (5) S.6 angegebene Formel ist hier in die Bestandteile X_1 und X_2 aufgespalten:

$$X_1 = N \cdot d \cdot \pi \cdot \langle \rho_1^2 \rangle \quad X_2 = N \cdot d \cdot \pi \cdot a^2 \quad (14a)$$

BARRETT /37/ stellte aus experimentellen $X_{\min}$ -Werten in Anlehnung an LINDHARDs Formel (5) folgende Gleichung zur Berechnung von $X_{\min}$ auf:

$$X_{\min} = N \cdot d \cdot \pi \cdot (C \cdot \langle \rho_1^2 \rangle + C' \cdot a^2) \quad (14)$$

Dabei ergaben sich folgende Fitparameter: $C = 3,0$ und $C' = 0,2$ /37/. Die mittleren quadratischen Auslenkungen der Kettenatome senkrecht zur Kette $\langle \rho_1^2 \rangle$ für KCl sind in dieser Arbeit nach BUYERS und SMITH /38/ berechnet. Der Vergleich der theoretischen mit den experimentellen Werten

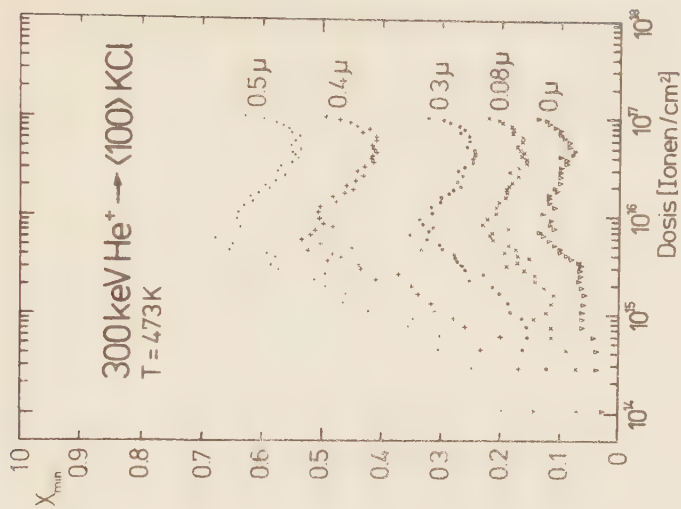


Abb. 10: Verlauf von $X_{\min}$ mit der Bestrahlungsdosis für verschiedene Tiefen.

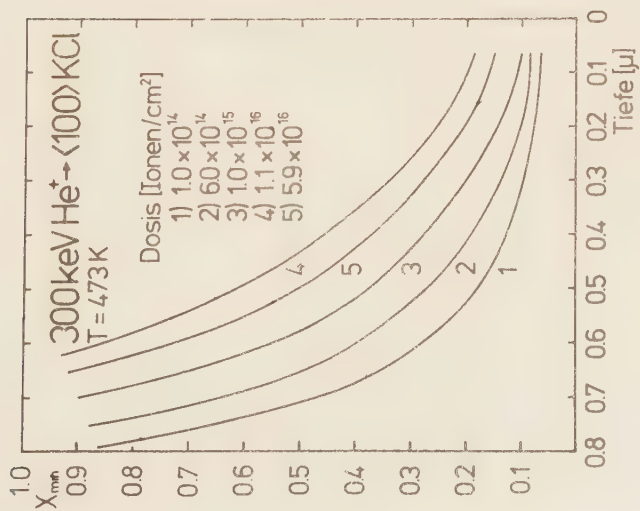


Abb. 9: Normierte Rückstreuenspektren $X_{\min}(t)$ für verschiedene Bestrahlungsdosen.

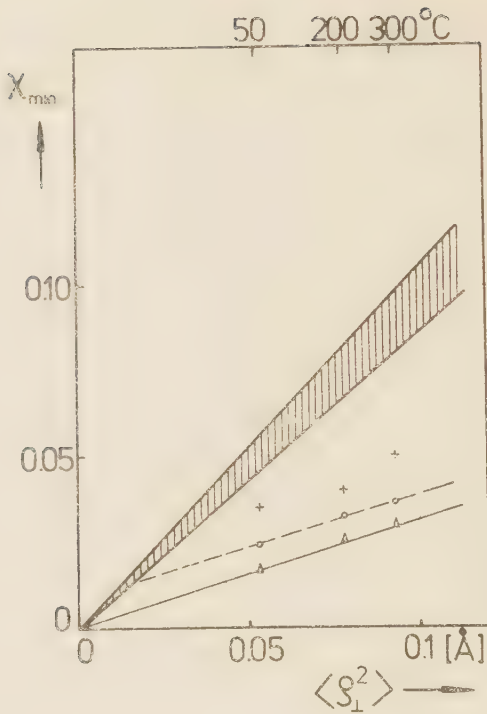


Abb.11: Experimentelle (+) und theoretische $X_{\min}$ in Abhängigkeit von der Temperatur.
 Schraffierter Bereich: Werte nach BARRETT /37/;
 Dreiecke: X_1 , Kreise: $X_1 + X_2$ nach LINDHARD /23/
 s.Gl.(14a); Kreuze: vorliegende Experimente.

in Abb.11 zeigt, daß die experimentellen $X_{\min}$ -Daten für 300 keV He^+ auf KCl zwischen den nach LINDHARD und den nach BARRETT berechneten Werten liegen. Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit denen von HOLLIS /5/ für 1 MeV Heliumbestrahlung von Natriumchlorid.

Das in den Abb.9 und 10 dargestellte, anomale Verhalten von $X_{\min}$ als Funktion der Dosis, d.h. die Wiederabnahme von $X_{\min}$ bei zunehmender Bestrahlungsdosis, wurde auch von HOLLIS /5/ für 1 MeV He^+ -Bestrahlung von NaCl und von HOLLIS u.a. /6/ bei 1 MeV Heliumbestrahlung von KCl, NaCl und LiF gefunden.

Während diese Autoren jedoch über derartige Minima bei Bestrahlungstemperaturen von 295 K und darunter berichten, zeigt sich in den vorliegenden Experimenten dieser Effekt nur für He^+ -Bestrahlungen oberhalb von 400 K, wie die Auftragungen von $X_{\min}(D)$ für 323 K, 473 K und 573 K in Abb.12 und für 398 K und 423 K in Abb.13 belegen. Die Bestrahlungen bei 398 K und 423 K wurden durchgeführt, um die untere Temperaturgrenze zu finden, bei der Minima in $X_{\min}(D)$ noch auftreten.

Bei Bestrahlung von KCl mit 300 keV Wasserstoffionen trat kein Minimum in $X_{\min}(D)$ auf, weder bei tiefen noch bei hohen Temperaturen (siehe Abb.14). Das deckt sich mit dem kontinuierlichen Anstieg von $X_{\min}(D)$ bei 1 MeV-Deuteronenbeschuss von KCl, den PRICE u.a. /7/ fanden. Diese Autoren vermuten, daß solche Minima in $X_{\min}(D)$ nur bei Bestrahlung mit Edelgasionen auftreten können. Wie jedoch bereits HOLLIS /5/ ausführte, kann das nicht der Fall sein. Aus den gemessenen $X_{\min}$ -Werten zu Beginn der Bestrahlung und beim maximalen $X_{\min}$ ergibt sich nach Gleichung (12) S.10, daß etwa 10% der Atome nach dieser Bestrahlungsdosis versetzt sind. HOLLIS schätzt jedoch, daß die implantierte Heliumdichte in der Nähe der Oberfläche nicht größer als 0,01% ist. Auch aus der Abb.10 der vorliegenden Messung und Gleichung (12) S.10 ergeben sich ca. 10% versetzte Atome, und die implantierte Heliumkonzentration im oberflächennahen Bereich beträgt nur Bruchteile von Atomprozent. Dazu ist jedoch zu bemerken,

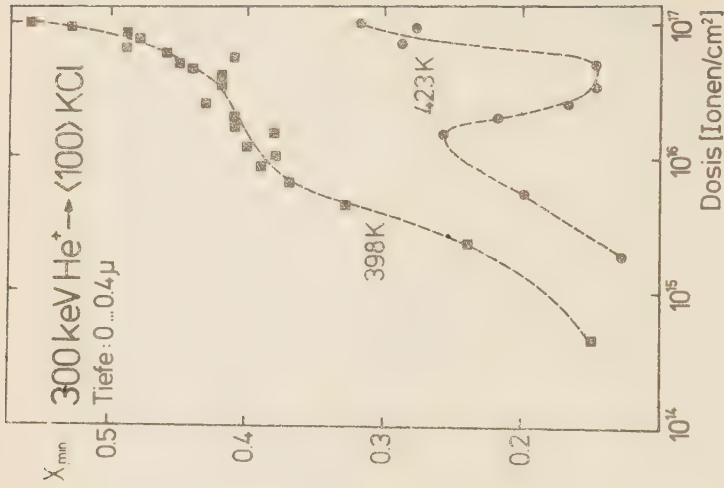


Abb. 13: Verlauf von X_{min} mit der Dosis für 398 K und 423 K Bestrahlungstemperatur.

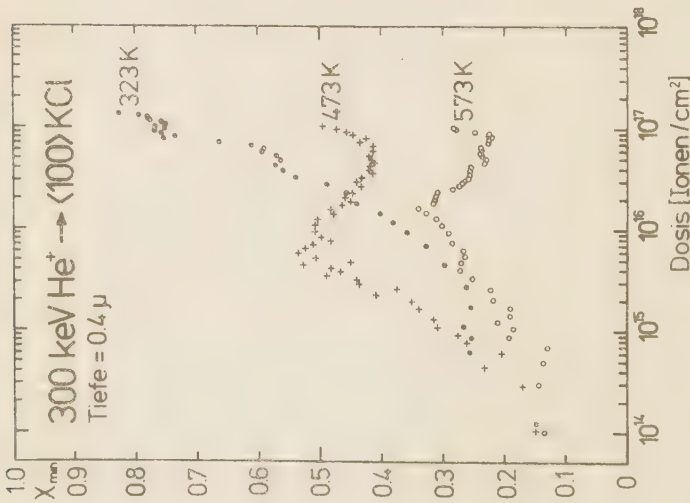


Abb. 12: Verlauf von X_{min} mit der Bestrahlungsdosis für verschiedene Temperaturen.

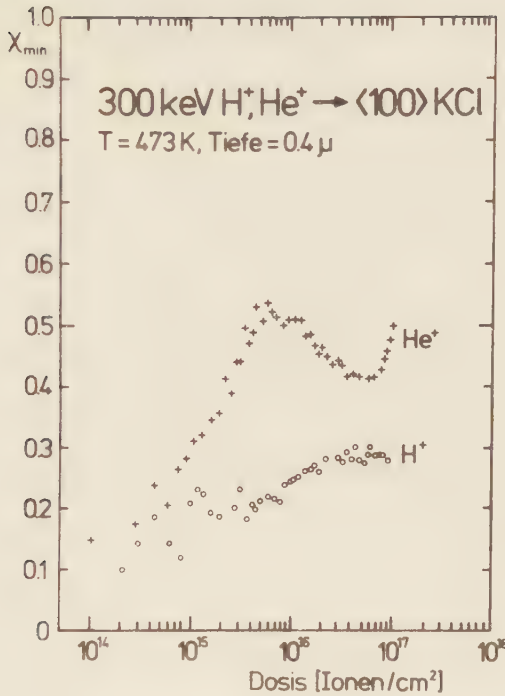


Abb.14: Vergleich des Verlaufs von $X_{min}(D)$ für He (+) und H (o)-Bestrahlung von KCl bei 473 K.

daß Punktdefektkonzentrationen von 10% in Alkalihalogeniden nicht zu erwarten sind. Es könnte sich nur um eine Agglomeration von Punktdefekten nahe der Oberfläche handeln, die z.B. von IZUMI /40/ bereits beobachtet wurde.

HOLLIS /5/ selbst schlägt vor, daß die Abnahme in $X_{min}(D)$ nur ein Umordnungsprozeß von Zwischengitteratomen ist und keine echte Abnahme der Defekte. So könnte etwa die Bildung

von Defektclustern zu einer Abnahme von $X_{\min}$ führen, da viele Atome, die vorher im Kanal waren, als Clusteratome nicht mehr im Kanal sitzen. Der Abnahmeeffekt wird durch das Fluxpeaking (höhere Ionenstrahldichte in der Kanalmitte, siehe Sh. ROTH und R. SIZMANN /39/) noch verstärkt. K. IZUMI /40/ hat solche Cluster in KCl nach Elektronenbestrahlung nachgewiesen. Auch D.R. WESTERVELT /41/, E. AERTS u.a. /42/ und L.W. HOBBS u. A.E. HUGHES /43/ haben solche Defektagglomerate in Alkalihalogeniden gefunden. Diese Autoren fanden jedoch, daß diese Cluster bei Temperaturen oberhalb von 423 K verschwinden. Das deckt sich mit dem Verschwinden der flächenförmigen Defekte bei ebenfalls 423 K, die K. IZUMI fand. K. KOBAYASHI /44/ und R. SMOLUCHOWSKI /45/ berichten ebenfalls von einer ähnlichen Temperaturabhängigkeit der durch Bestrahlung erzeugten Defekte in Alkalihalogeniden.

Auch die vorliegenden Messungen scheinen auf einen Ausheilmechanismus hinzudeuten, der bei einer kritischen Dosis einsetzt (Abb.12 und Abb.13). In diesen Messungen konnten flächenförmige, gerichtete Defektagglomerate nach Bestrahlung von KCl-Kristallen bei Bestrahlungstemperaturen auch oberhalb von 423 K im Auflichtmikroskop nachgewiesen werden. Diese Agglomerate heilen jedoch bei Zimmertemperatur innerhalb von 10...14 Stunden aus. Die Abb.15a und 15b zeigen solche, entlang (110)-Ebenen ausgerichtete Defekte vor und nach dem Einsetzen der Ausheilung. Die Abbildungen geben Kristalloberflächen wieder, die mit ca. 50 Å Gold bedampft worden sind und danach bei 523 K bis zu einer Dosis von $5 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ bestrahlt wurden. Die Goldbeschichtung zeigt, daß diese Defektagglomerate durch Wechselwirkung der Kristalloberflächen mit der Luft nicht beeinflußt werden, da vorher an unbeschichteten Kristallen die Bildung solcher gerichteter Defekte während der Mikroskopuntersuchungen ebenfalls beobachtet worden war. Auch bei den beschichteten

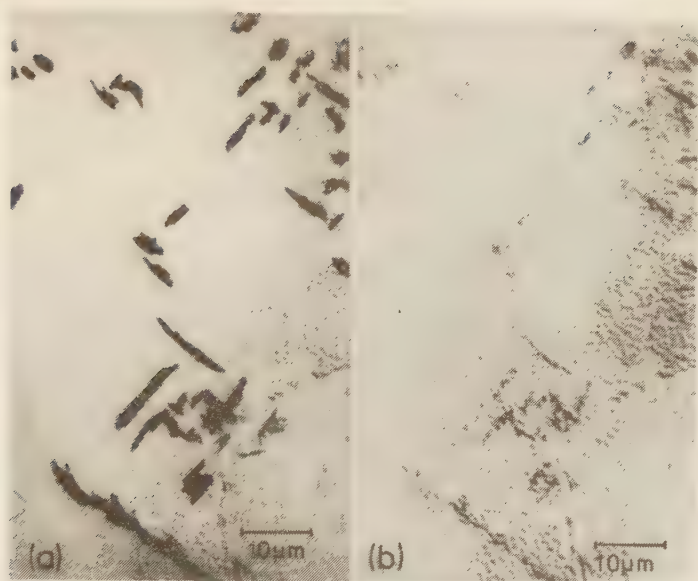


Abb.15: Auflicht-Differential-Interferenz-Kontrast-Mikroskopaufnahmen von He^+ -bestrahlten KCl-Einkristallen. (a) eine Stunde nach Bestrahlungsende, (b) 12 Stunden nach Bestrahlungsende.

Kristallen wurde der Ausbildungsprozess solcher Defekt-agglomerate beobachtet, konnte aber nicht photographisch festgehalten werden, da man nicht vorher weiß, an welcher Stelle des Kristalls sich neue Defekte bilden, und nicht die ganze nähere Umgebung des Strahlflecks mit genügender Vergrößerung beobachtet werden konnte. Die Defekt-agglomerate erscheinen nämlich nicht im Strahlfleck, sondern in einer Entfernung von mehr als 100μ davon (siehe Abb.16). J. AGARBICEANU u. I. TEODORESCU /46/ sowie L.C. ARSENOVICI u. P.D. TOWNSEND /47/ berichten ebenfalls von einer Ausbildung ähnlicher flächenförmiger Defekttagglomerate während

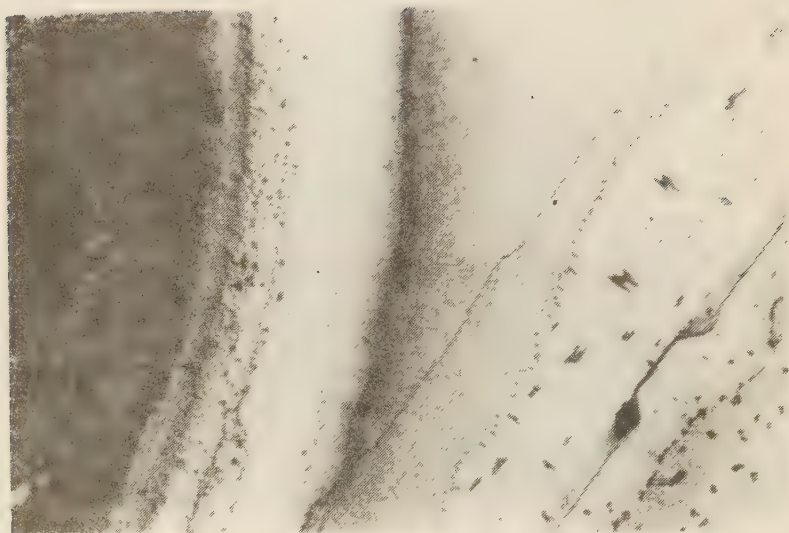


Abb.16: Auflichtmikroskop-Aufnahme des Strahlflecks (dunkler Teil links) und seiner Umgebung auf einer KCl-Kristalloberfläche, die vor der Bestrahlung mit Gold bedampft worden war.

Lichtmikroskopbeobachtung auf elektronenbestrahlten NaCl-Kristallen. Sie führen ihre Entstehung auf die Einwirkung von Licht zurück. Es besteht vermutlich kein Zusammenhang zwischen dieser Agglomeratbildung und dem von HOLLIS /5/ vermuteten Defektumorientierungsprozess und der Abnahme des Strahlenschadens während der Bestrahlung.

In Abb.16 sind neben dem Strahlfleck drei Arten von Defekten zu sehen: (1) die oben beschriebenen gerichteten Defekt-

agglomerate in großer Entfernung vom Strahlfleck, (2) in einer Ringzone zwischen diesen Defekten und dem Strahlfleck kleinere bläschenartige Defekte und (3) kleine dunkle Pünktchen am Strahlfleckrand. Während die gerichteten Defekte nach Tagen vollkommen verschwunden sind, bleiben die Bläschen und auch die Defekte am Strahlfleckrand erhalten

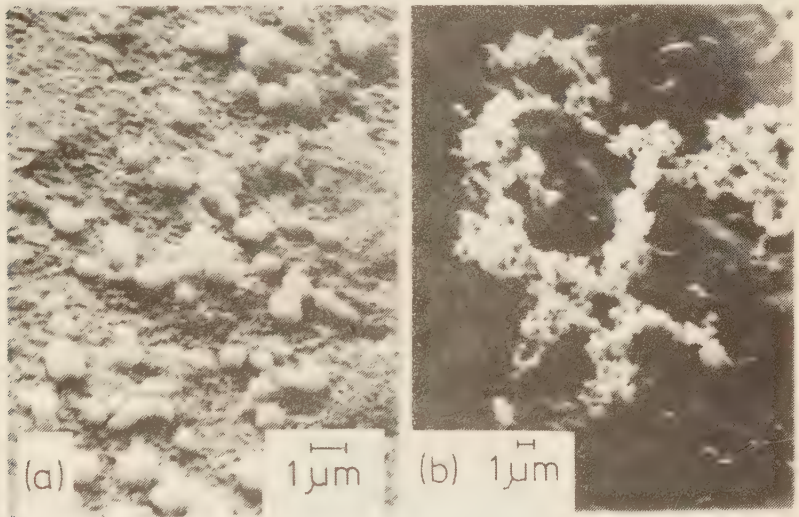


Abb.17: SEM-Aufnahme eines bei 700 K bestrahlten KCl-Kristalls, (a) Strahlfleckrand, (b) Strahlfleckausschnitt.

Bei den letzteren scheint es sich um die gleichen Defekte zu handeln, die in Abb.17a, einer Sekundärelektronen-Mikroskopaufnahme eines bei 700 K bestrahlten Kristalls, zu sehen sind. Sie tauchen dort ebenfalls am Rand des Strahlflecks auf. L.C. ARSENOVICI u. P.D. TOWNSEND /47/ haben auch solche Defekte gefunden und vermuten, daß es sich dabei um Wiederablagerung von bereits abgetragenen Material handelt. Es könnte aber auch sein, daß es Alkalimetallausscheidungen sind.

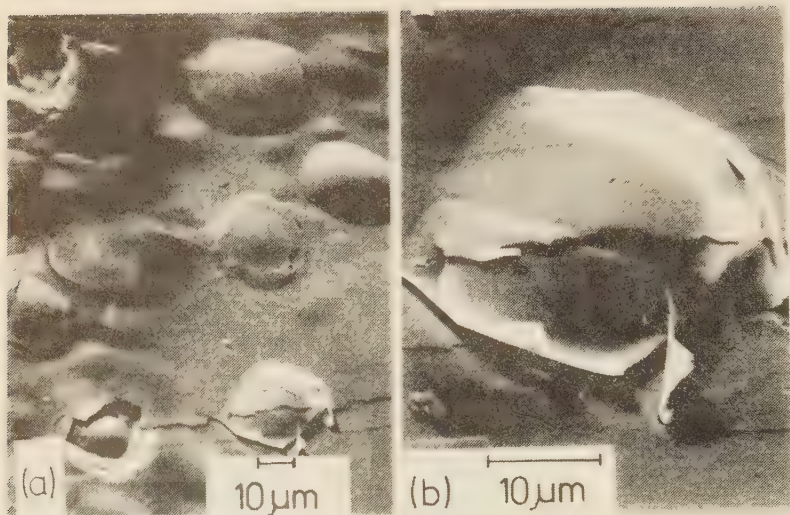


Abb.18: SEM-Aufnahme des Strahlflecks einer bei 323 K mit $5 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ bestrahlten KCl-Kristalloberfläche.

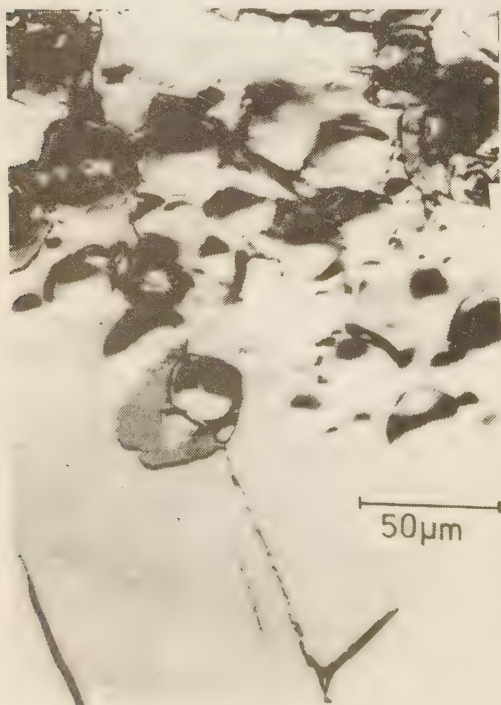


Abb.18c:
Auflichtmikroskop-
Aufnahme des Strahl-
flecks und seiner
Umgebung.

Untersuchungen mit der Mikrosonde ließen keinen eindeutigen Schluß zu, da die Reichweite der Primärelektronen bedeutend größer ist als der Durchmesser dieser Kügelchen. Abb.17b, die einen Ausschnitt des Strahlflecks zeigt, wird erst in Abschnitt 3 diskutiert.

Auf eine ganz andere Art von Strahlenschädigung weisen die Kristalloberflächen von KCl-Kristallen hin, die bei 320 K bestrahlt worden sind. Erstens ist hier der Strahlfleck violett-blau gefärbt, während die bei hoher Temperatur bestrahlten Kristalle einen milchig weißen Strahlfleck aufweisen. Zweitens entstanden unter He^+ -Beschuß im Strahlfleck Blasen von ca. 50μ Durchmesser, während neben dem Strahlfleck sich nur kleine Bläschen zeigen, die sich anscheinend an den Spaltstufen ansammeln. Diese Erscheinungen sind in den Abb.18a,b,c dargestellt. Es traten bei den Niedrigtemperaturbestrahlungen jedoch nie gerichtete Defektagglomerate außerhalb des Strahlflecks auf, was beweist, daß thermische Transportmechanismen für ihre Bildung verantwortlich sind. Ferner war der Strahlfleck bei diesen Bestrahlungen auf gleicher Höhe wie die unbestrahlte Oberfläche, während die Hochtemperaturbestrahlungen eine Vertiefung in dem Kristall hinterließen. Dieser Befund wird erst im folgenden Abschnitt über Oberflächenzerstäubung näher erläutert. Die dort beschriebenen Zerstäubungsexperimente bieten auch eine einfache Erklärung des anomalen Verlaufs von $\chi_{\min}(0)$ an. Aus diesem Grunde werden die Strahlenschadenkurven (Abb.9,10, 12,13 und 14) erst in Kapitel 4 abschließend behandelt.

3. Oberflächenzerstäubung

3.1 Grundlagen der Messungen

Oberflächenzerstäubung oder Sputtering ist im physikalischen Sinn die Abtragung von Oberflächenatomen eines Festkörpers unter Einwirkung von Strahlung. Sie wird normalerweise durch Stoßfolgen verursacht, die durch einfallende Teilchen in einer oberflächennahen Schicht erzeugt werden. Es liegt sozusagen der gleiche Mechanismus wie bei der Erzeugung von Strahlenschäden vor. Ganz allgemein kann man sagen, daß jede Art von Strahlung, die in einem Festkörper Defekte erzeugt, auch Oberflächen abtragen kann. Für den Fall einer Ionenbestrahlung hat P. SIGMUND /48,49/ eine umfassende theoretische Behandlung der Oberflächenzerstäubung veröffentlicht. Seine Rechnungen basieren auf der Transporttheorie (Lösung der Boltzmann-Gleichung) und gelten nur für isotrope, homogene Medien. Unter den meisten experimentellen Bedingungen sollte aber auch das Sputtering von polykristallinen Festkörpern gut beschrieben werden. Für Rückwärtssputtering erhält er folgenden Ausdruck für die Sputterrate A:

$$A = \int d^3v_0 \cdot |v_{0x}| \cdot \int_0^{\infty} dt \cdot G(x=0, \vec{v}_0, \vec{v}, t) \quad (15)$$

wobei die Verteilungsfunktion $G(x, \vec{v}_0, \vec{v}, t)$ die Boltzmann-Gleichung erfüllen muß. Sie gibt die mittlere Anzahl von Atomen wieder, die sich zur Zeit t in einer Schicht (x, dx) mit einer Geschwindigkeit $(\vec{v}_0, d^3v_0)$ bewegen, wenn sie zur Zeit $t=0$ in der Ebene $x=0$ mit der Geschwindigkeit $\vec{v}$ gestartet sind. Eine erste Näherungslösung ergibt als Sputterrate für Reflexionssputtering bei senkrechtem Ioneneinfall:

$$A(E) = \frac{3,44 \cdot 10^{-16}}{U_0} \cdot \alpha \cdot S_n(E) \quad (16)$$

U_0 ist die Oberflächenbindungsenergie der Targetatome, α ist eine Konstante, die in erster Linie vom Verhältnis Targetmasse/Ionenmasse bestimmt wird und $S_n(E)$ ist der nukleare Energieverlust/Weg.

Die Gültigkeit der Formel (16) ist durch verschiedene Sputtermessungen an Metallen und Halbleitern gut bestätigt worden /50-54/. Diese Messungen wurden alle an polykristallinen Targets gemacht. H.E. ROOSENDAL u. J.J.Ph. ELICH /55/ fanden bei Ar^+ - und Ne^+ -Sputtering von einkristallinem Kupfer, daß sich die Sputterraten um 13% bis 16% erhöhen gegenüber polykristallinem Material durch das Auftreten von fokussierenden Stoßfolgen. Die Reproduzierbarkeit von Sputterraten ist jedoch ohnehin bei Messungen an verschiedenen Proben im allgemeinen nicht besser als $\pm 50\%$.

3.2 Übersicht über Alkalihalogenidzerstäubung durch Ionen

Ionenkristallsputtering durch schwere Ionen ist in der vergangenen Zeit von mehreren Autoren /9-19/ untersucht worden. Alle diese Experimente wurden jedoch bei niedrigen Temperaturen und niedrigen Ionenenergien durchgeführt. Die ersten Messungen stammen von G.M. BATANOV /9/, der bei Beschuß von KCl, KBr, NaCl und NaF mit 0,1...4 keV K^+ -Ionen einen Zerstäubungskoeffizienten von maximal 0,1 Ionen/Ion für Anionenbeschuß und von maximal 0,13 Ionen/Ion für Kationenbeschuß fand. B. NAVINSEK /10/ bestrahlte KCl, KBr NaCl und NaF mit 2...10 keV Ar^+ -Ionen und ermittelte aus dem Gewichtsverlust der Targets Sputterraten bis maximal

2,1 Atome/Ion. Die Targettemperatur stieg bei diesen Experimenten infolge der Ionenbestrahlung bis 373 K, das muß man bei der Diskussion dieser Daten berücksichtigen (siehe Abschnitt 4). Z. JURELA /11/ hat nur die emittierten, geladenen Teilchen bei Beschuß von KCl und NaCl mit 40 keV Ar^+ -Ionen nachgewiesen (0,136 Na^+ /Ion und 0,16 K^+ /Ion). Alle anderen Autoren /12-16/, die Alkalihalogenide durch schwere Ionen gesputtert haben, geben nur relative Raten an oder berichten über bevorzugte Austrittsrichtungen von gesputterten Teilchen /17-19/. Die einzige Veröffentlichung mit einer absoluten Angabe der Abtragsrate von Alkalihalogeniden durch schwere Ionen ist bislang die von B. NAVINSEK /10/. Der gemessene Wert von 2 Atomen/Ion für 10 keV Ar auf KCl ist fast einen Faktor zwei kleiner als der Wert, den SIGMIUNDS Formel (16) liefert. Dabei wurde für die Bindungsenergie $U_0(\text{KCl})$ der von Z. JURELA /11/ angegebene Betrag von 4,08 eV und α aus SIGMUNDS Figur 13 /48/ eingesetzt. Auf den Beschuß von KCl mit 300 keV He^+ -Ionen angewendet, ergibt diese Formel eine Abtragsrate von ca. 0,035 Atome/Ion. Betrachtungen der bei 573 K mit $1 \cdot 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ bestrahlten KCl-Einkristalle (bei den Strahlenschaden Untersuchungen) unter dem Lichtmikroskop zeigten jedoch, daß bei dieser Targettemperatur die Abtragsraten um Größenordnungen höher sein müssen. Dieser Befund gab den Anstoß zu einer systematischen Untersuchung der Abtragsraten von Alkalihalogeniden durch Beschuß mit schweren, energetischen Teilchen.

Bislang existieren noch keine Zerstäubungsmessungen an Alkalihalogeniden durch H^+ - und He^+ -Ionen, wahrscheinlich, weil von der Theorie her keine meßbaren Abtragsraten in vernünftigen Bestrahlungszeiten zu erwarten sind.

3.3 Experimente und Ergebnisse

Die Abtragungsraten wurden sowohl an frisch gespaltenen KCl-Einkristallen als auch an polykristallinen, dünnen Filmen von KCl, KBr und KJ gemessen. Die Bestrahlungserichtungen und die Nachweiselektronik sind die in Kapitel 2.3 beschriebenen. Als Meßmethoden wurden mikroskopische Beobachtung und Rutherford-Rückstreuung angewendet.

3.3.1 Mikroskopbeobachtung

Diese Messungen schlossen sich direkt an die Strahlenschaden-Untersuchungen an, d.h. es wurden auch dieselben Einkristallchärgen verwendet. Die Kristalle wurden mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1^\circ$ mit der $\langle 100 \rangle$ -Richtung parallel zum Ionenstrahl auf das Goniometer montiert und bei einer festen Temperatur bis zu einer Dosis von $5 \cdot 10^{17}$ Ionen/cm² bestrahlt. Zur Dosisbestimmung wurde der Targetstrom in kurzen Zeitintervallen auf dem Faradaybecher gemessen, der zwischen Blende und Target geschwenkt werden konnte (siehe Abb.5). Während der Bestrahlung des Targets wurde auch auf diesem der Strom gemessen, der aber nur ein relatives Maß für den Ionenstrom darstellt, da Sekundärelektronen und Elektronen von der Targetheizung sich hinzuaddieren. Nach Bestrahlungsende wurde die Größe der Vertiefung, die der Ionenstrahl nach $5 \cdot 10^{17}$ Ionen/cm² im Kristall hinterlassen hat, mit dem Auflichtmikroskop gemessen. Das geschah durch abwechselndes Fokussieren auf bestrahlte und unbestrahlte Stellen des Kristalls. Die am Feinfokusmikrometer abgelesene Differenz ergab die Dicke der abgetragenen Schicht. Die Dicke wurde für jede Bestrahlung rund um den Strahlfleck herum an ca. 15 bis 20 Stellen gemessen. Es wurden Tiefen bis 35μ ermittelt. Die Schwankungen der Einzelmessungen betrugen $\pm 2\mu$ bei einer Ablesegenauigkeit von 1μ .

Aus dieser Dicke ergibt sich die Abtragungsrate A wie folgt:

$$A \text{ [Atome/Ion]} = \frac{\rho \cdot L \cdot d}{\bar{M} \cdot N_0} \quad (17)$$

wobei ρ die Dichte des Kristalls, L die Loschmidtsche Zahl, $\bar{M}$ das gemittelte Atomgewicht aus Kalium und Chlor, d die gemessene Dicke und N_0 die Anzahl der pro cm^2 auf das Target geschossenen Ionen ist. Eine abgetragene Materialschicht von 1μ bedeutet somit bei einer Dosis von $5 \cdot 10^{17}$ Ionen/ cm^2 eine Abtragungsrate von 6,4 Atomen/Ion. Kontrollmessungen bei He^+ -Beschluß in Randomrichtung ergaben keine über die Meßgenauigkeit hinausgehende Abweichung in der Abtragungsrate. Für die verwendeten Ionenstromdichten von 3,5...14 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ zeigten sich die gleichen Abtragungsraten. Eine Bestrahlung mit 70 keV Ar^+ -Ionen bei 508 K ergab eine Sputterraten, die einen Faktor zwei unter der für 300 keV He^+ -Ionen lag. Unterhalb von 320 K konnte keine Zerstäubung gemessen werden (Tabelle I).

Bei all diesen Mikroskop-Untersuchungen zeigten sich die bereits in den Abb. 14 bis 17 dargestellten Defekte. Kristalle, die vor der Bestrahlung mit einer ca. 50 Å dicken Goldschicht bedampft worden sind, zeigen zwar, wie bereits erwähnt, auch die gerichteten Defektagglomerate, wurden aber auch bei hohen Temperaturen nicht meßbar abgetragen. Das zeigt auch Abb.16, da sowohl der Strahlfleck als auch die unbestrahlte Fläche gleichzeitig scharf abgebildet werden. Die aus den Mikroskop-Untersuchungen gewonnenen Abtragungsraten für KCl-Einkristalle sind in Tabelle I aufgelistet und in der Abb.22b zusammen mit denen von KCl-Filmen in einem Arrhenius-Diagramm aufgetragen.

3.3.2 Rutherford-Rückstreuexperimente

Der große Vorteil der Abtragungsratenbestimmung durch die Rutherford-Rückstreuung von dünnen Folien liegt darin, daß der He^+ - oder H^+ -Ionenstrahl, der die Schichten abträgt, gleichzeitig zur Messung der Dickenänderung während der Bestrahlung verwendet werden kann. Ferner haben die He^+ - und H^+ -Ionen in der ganzen Schicht annähernd gleiche Energie, so daß der Rutherfordstreuquerschnitt für die Auswertung als konstant angesehen werden kann. Die Sputterexperimente mit Argonionen wurden durch alternierenden Beschuß von KCl mit Ar^+ zur Abtragung und mit He^+ zur Dickenbestimmung durchgeführt. Es wurde getestet, daß gewöhnliches Verdampfen von Kaliumchlorid im Vakuum gegenüber der Zerstäubung zu vernachlässigen ist und Sekundärelektronen, die vom Ionenbeschuß ausgelöst auf das Target zurückprallen, die Oberflächenzerstäubung nicht beeinflussen:

Eine Probe, die 2,5 Stunden auf einer Temperatur von 573 K gehalten wurde und bereits bis zu einer Dosis von $5 \cdot 10^{16} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ beschossen war, zeigte nach dieser Temperung ohne Ionenstrahl keine Veränderung in der Dicke. Absaugen der Sekundärelektronen durch einen positiv geladenen Ringkolektor dicht vor dem Target brachte ebenfalls keine Änderung der Abtragungsraten.

Die verwendeten Targets wurden in zwei Aufdamfschritten hergestellt. Da freitragende Folien nur eine begrenzte Lebensdauer im Ionenstrahl haben /56/, wurden die Alkalihalogenidschichten auf Kohlenstoff aufgedampft, der selbst wieder auf eine Reinstaluminiumfolie aufgedampft war. Durch diese etwa $0,2 \dots 0,4 \mu$ dicke Kohlenstoffschicht wird die Rückstreuenergie des tragenden Aluminiums zu niedrigerer Energie hin verschoben, so daß die Teilchen, die von den Alkalihalogeniden zurückgestreut werden, energetisch

gut von den übrigen getrennt sind. Die verwendeten KCl-Schichten hatten Dicken von $0,2 \dots 0,3 \mu$, die KBr- und die KI-Schichten von etwa $0,06 \mu$. Die Dicken der einzelnen Schichten wurden beim Aufdampfen mit einem Quarzmonitor bestimmt. Diese Dickenbestimmung wurde durch Wiegen der Proben vor und nach dem Aufdampfen und durch Interferenzmikroskopmessungen kontrolliert. Aus der Rutherford-Rückstreuozählrate konnte ebenfalls auf die Dicke der Probe geschlossen werden. Wiegen, Interferenzmessung, Quarzmonitoranzeige und Rutherford-Rückstreuozählrate stimmten auf 5% überein.

Ein Beispiel für die gemessenen Rückstreuenspektren nach verschiedenen Bestrahlungsdosen zeigt Abb. 19a. Die Schichtdicke d ist proportional der integralen Zählrate unter dem Flächenpeak unter der oben erläuterten Annahme konstanter Rutherfordstreuquerschnitte (Fehler $\leq 10\%$):

$$d = \frac{N}{N_0 \cdot n \cdot d\sigma} \quad (18)$$

wobei N_0 die das Target treffende Ionenzahl, n die Volumendichte der Targetatome und $d\sigma$ der differentielle Wirkungsquerschnitt ist.

$$d\sigma = \left(\frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot (M_1 + M_2)}{4 \cdot M_2 \cdot \sin^2(\theta/2) \cdot E} \right)^2 \cdot d\Omega \quad (19)$$

θ ist der Streuwinkel im Schwerpunktsystem und $d\Omega$ der Raumwinkel, unter dem beobachtet wird.

Der Anstieg der niederenergetischen Flanke des Flächenpeaks stellt ein Maß für die Gleichmäßigkeit der Abtragung dar. Bei völlig gleichmäßiger Abtragung müßte sie eher

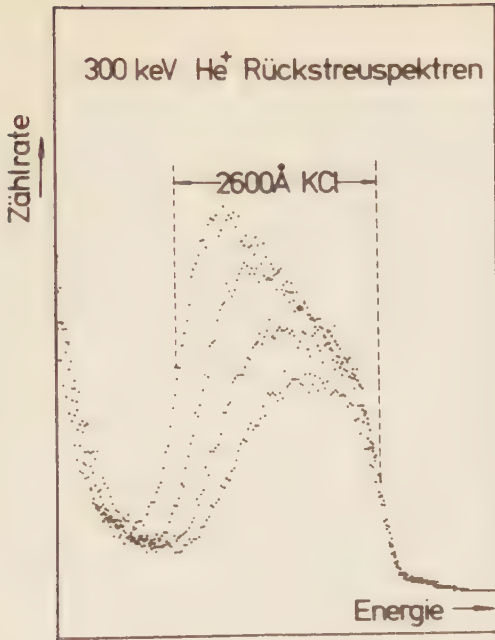


Abb. 19a:

Rutherford-Rückstreu-
spektren von einer KCl-
Folie nach Bestrahlung
mit je $1,3 \cdot 10^{15} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$
bei 593 K.

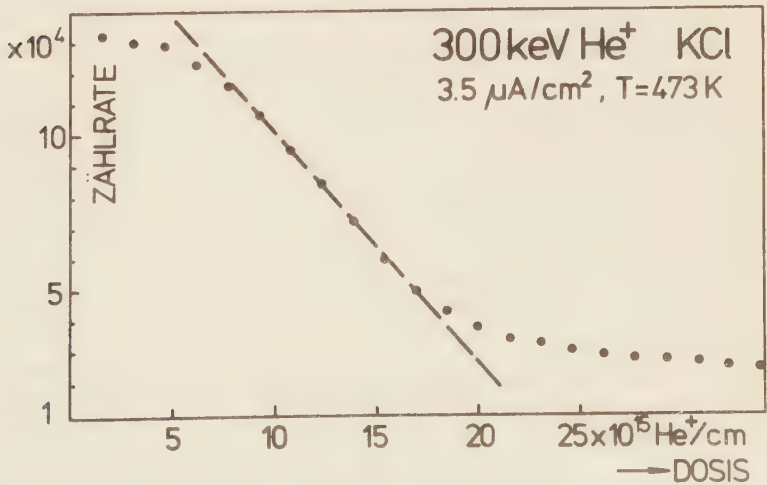


Abb. 19b: Abnahme der Rückstreu­zählrate bei Beschuß einer KCl-Folie mit 300 keV He und einer Targettemperatur von 473 K.

etwas steiler als ... flacher werden, da die Energieverschmierung in dünneren Schichten kleiner ist. Betrachtet man nun die Steigung der niederenergetischen Flanke in Abb.19a für zunehmend dünnere Schichten, so stellt man fest, daß die Abtragung von Anfang an nicht homogen ist. In Abb.19b ist die Abnahme der KCl-Zählrate mit zunehmender Dosis bei 473 K Bestrahlungstemperatur aufgetragen. Aus dem linearen Bereich der Abnahme wird die Abtragungsrate A bestimmt:

$$A = N_a / N_o \quad (20)$$

N_a ist die Anzahl der abgetragenen Atome, die man mit Gleichung (17) und (18) aus den Zählraten bei Dosis D_1 und D_2 erhält. N_o ist die von Dosis D_1 bis Dosis D_2 auf das Target getroffene Teilchenzahl.

Der horizontale Verlauf der Zählrate mit der Dosis in Abb.19b zu Beginn der Bestrahlung besagt, daß die Abtragung erst nach einer Dosis von ca. $6 \cdot 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ einsetzt. Das ist aber ziemlich genau die Dosis, bei der die in Abschnitt 2.4, Abb.14 beschriebene Abnahme des Strahlenschadens für den 300 keV He^+ -Beschuß von KCl bei 473 K beginnt. Bei Beschuß mit Protonen unter sonst gleichen Bedingungen, Abb.19c, setzt die Abtragung erst bei ca. $3 \cdot 10^{16} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ ein und erreicht ihre volle Geschwindigkeit erst bei einer Dosis von $6 \cdot 10^{16} \text{ H}^+/\text{cm}^2$. Das deckt sich genau mit dem in Abb.14 dargestellten Strahlenschadenverlauf von KCl unter Protonenbeschuß. Danach kann man durchaus annehmen, daß auch bei Protonenbeschuß über die Dosis von $1 \cdot 10^{17} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ hinaus ein Minimum in $\chi_{\min}(D)$ auftreten würde, das jedoch eventuell, wegen des sehr viel langsameren Einsetzens der Zerstäubung (Abb.19c) im Vergleich zur Heliumzerstäubung (Abb.19b), weniger ausgeprägt sein könnte. Es besteht daher kein Grund zur Annahme, daß Protonen oder Deuteronen

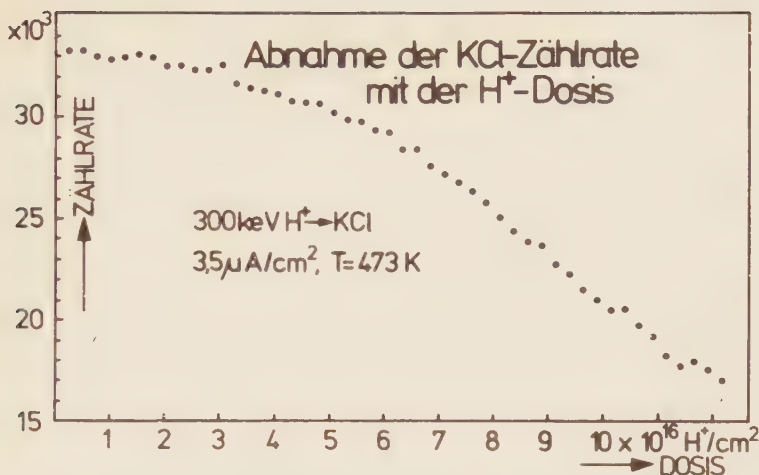


Abb.19c: Abnahme der Rückstreu­zählrate von einer KCl-Schicht mit der H-Dosis.

prinzipiell andere Effekte als Helium hervorrufen.

Der flachere Verlauf der Zählraten in Abb.19b oberhalb einer Dosis von ca. $2 \cdot 10^{16} He^+/cm^2$ bedeutet zusammen mit der Abnahme der Flächenpeaks an Höhe (Abb.19a), daß die KCl-Schicht nicht mehr die volle Fläche des Strahlflecks bedeckt und das restliche KCl nicht mehr abgetragen wird. Das bestätigt auch die SEM-Aufnahme Abb.17b, die den Strahlfleck nach Bestrahlungsende zeigt. Derartige Bilder hat man bei fast allen Sputterexperimenten gefunden /47/ und /57-61/. Man erklärt das Auftreten derartiger Säulen und Spitzen durch das Vorhandensein von Oberflächenverunreinigungen mit niedriger Sputterrate.

Bei diesen Zerstäubungsratenmessungen mit Hilfe der Rutherford-Rückstreuung wurde KCl durch He^+ - und H^+ -Ionen unterhalb von 320 K nicht abgetragen. Nur die Zerstäubungsexperimente mit Argonionen ergaben auch bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen bereits meßbare Abtragung.

Sputterratenmessungen an KBr und KJ mit Hilfe der Rutherford-Rückstreuung von Heliumionen erlaubten eine Unterscheidung von Kaliumabtragung und Halogenabtragung. Das ist am Beispiel KBr in den Abb.20a,b und Abb.21a,b wiedergegeben. Dabei zeigte sich, daß bei Beschuß von KBr und KJ bei Zimmertemperatur mit 300 keV He^+ nur die Halogene abgetragen werden (Abb.20a,b). Bei Temperaturen oberhalb von 373 K nimmt jedoch die Zahl der Kalium- und der Halogenatome gleich stark ab (Abb.21a,b), wie die relativ gleich starke Abnahme der Zählraten für Kalium und Brom in Abb.21b verdeutlicht. (Der absolute Unterschied der Zählraten resultiert aus den unterschiedlichen Rutherford-Streuquerschnitten, die proportional zu Z_2 sind.) Die Zerstäubungsraten für KBr und KJ sind aus der Summe der gemessenen Abtragungen für Kalium und Brom bzw. für Kalium und Jod ermittelt. Die Zerstäubungsraten sind in der Tabelle I zusammengestellt.

In den Abb.22a,b,c,d,e sind die Zerstäubungsraten A aus den Bestrahlungen oberhalb von 400 K in Form von Arrheniusdiagrammen aufgetragen. Aus der Steigung dieser Geraden sind die Aktivierungsenergien ΔE für die Zerstäubung berechnet. Die Geraden sind Ausgleichsgeraden mit kleinsten Fehlerquadraten. Der Fehler der Steigungen ist etwa 10%.

In der Tabelle II sind die Aktivierungsenergien und die Zerstäubungsraten für die einzelnen Bestrahlungen zusammengestellt. Zur Interpretation der Meßdaten sind die theoretischen Werte für das Bremsvermögen, Gl.(8)-(11), angenommen.

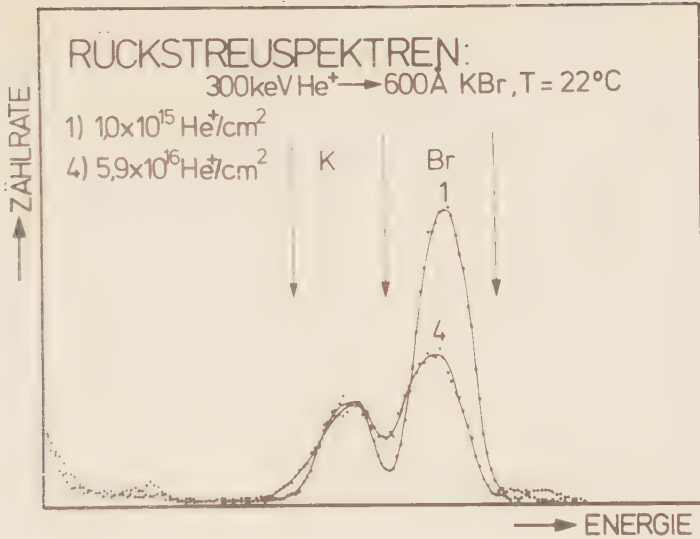


Abb.20a: Rückstreuungsspektren von KBr bei Zimmertemperatur. Die Pfeile bezeichnen die Lage der eingestellten Energiefenster.

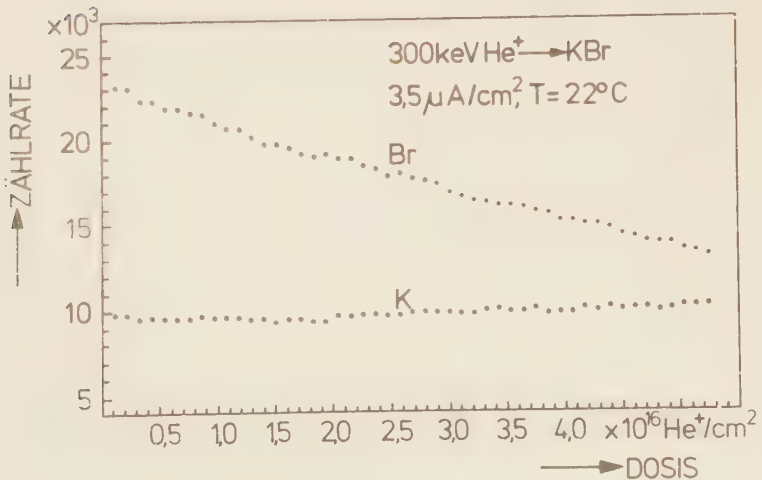


Abb.20b: Abnahme der Zählraten mit der Dosis für Kalium und Brom. Bei Zimmertemperatur bleibt Kalium unverändert.

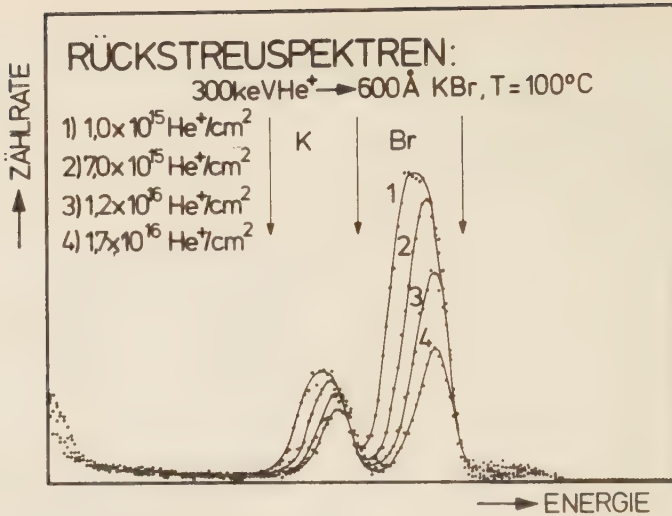


Abb.21a: Rückstreuungsspektren von KBr bei 373 K. Die Pfeile geben die Lage der eingestellten Energiefenster an.

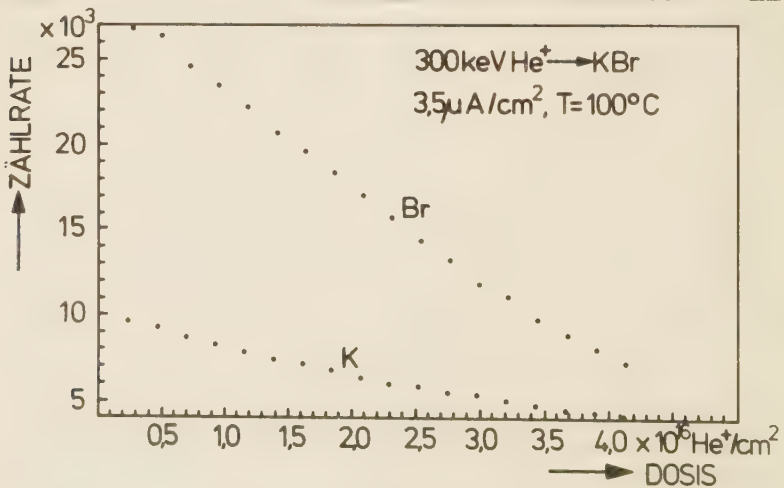


Abb.21b: Abnahme der Zählraten mit der Dosis für Kalium und Brom. Bei erhöhter Temperatur folgt die Kaliumabnahme der Bromabnahme direkt proportional.

TABELLE I: Zusammenstellung der gemessenen Zerstäubungsraten

T [°C]	A [Atome/Ion]	T [°C]	A [Atome/Ion]
300 keV H auf KCl		300 keV He auf KCl	
50	0	22	0
150	10	50	0
200	16	100	3
227	20, 22	150	9, 10
235	21, 22, 24, 24	175	12
300	23	220	18, 26, 27
310	17, 26	235	33, 37, 38, 40,
350	27, 28, 36		41, 43, 44
400	30, 36, 38	250	38
		260	36, 37
		300	29, 42
		350	48, 58
		366	64, 67
		400	53, 61, 83, 110
300 keV He auf <100> -KCl		300 keV He auf KBr	
22	0	Br K	
50	0, 6	22	1 0
138	19	100	4 2
235	52, 55, 65	140	9 7
290	73	150	5 5
330	103	200	10, 11 10, 12
457	130, 150	240	15 15
527	195	250	20 19
300 keV auf KJ		295	21 21
J K		335	40 30
170	9 8	340	41 38
210	5 7	385	63 64
260	13 17	390	71 70
310	26 30		
340	47, 40,		
	51 50		

Fortsetzung TABELLE I

T [°C]	A [Atome/Ion]	T [°C]	A [Atome/Ion]
300 keV Ar auf KCl		70 keV Ar auf KCl	
22	6,7	57	3
55	7,8	96	4
55	5,6	180	10
70	4,6	235	19
95	5	292	21,27
104	8	346	31
108	17		
111	18		
113	10		
120	17,25,25,28		
124	29		
150	18		
157	30		
164	28		
197	33,50		
212	32,41,59		
219	55,58		
220	38		
257	42		
270	45,47,57		
275	91,113		
280	59,61,71		
315	74		
324	51,61,71		
351	103		
365	68,93		

TABELLE II: Aktivierungsenergien, Zerstäubungsraten und Bremsvermögen

Ion - Target	ΔE	A [413 K]	S_e	S_n
	[eV]	[Atome/Ion]	[eV·Å ²]	[eV·Å ²]
70 keV Ar-KCl	0,14	15	524	1200
300 keV Ar-KCl	0,15	48	1093	723
300 keV He-KCl(x)	0,16	46		
100 keV He-KCl	0,17	28	452(678)	2,2
300 keV H -KCl	0,14	14	209	0,2
300 keV He-KBr	0,22	35	516(774)	3,8
300 keV He-KJ	0,27	31	535(803)	4,7

(x) bedeutet Zerstäubung von einkristallinem KCl in $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Die S_e -Werte in Klammern sind die, mit einem aus experimentellen Daten gefundenen Korrekturfaktor versehenen, theoretischen elektronischen Energieverluste/Weg, vgl. Abschnitt 3.4.

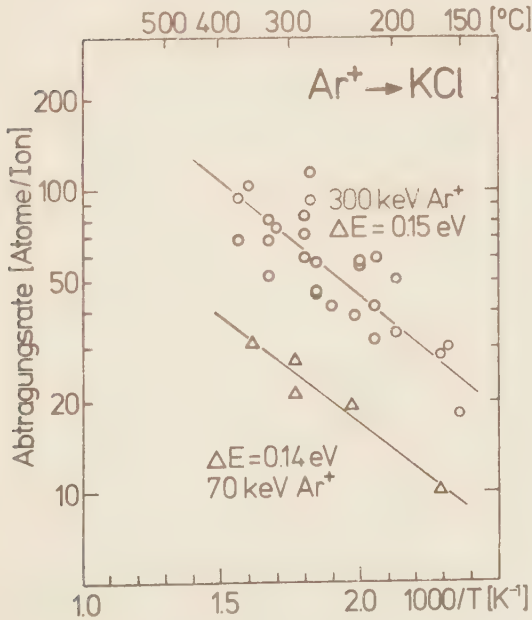


Abb. 22a:

Zerstäubung von KCl durch Argonionen.

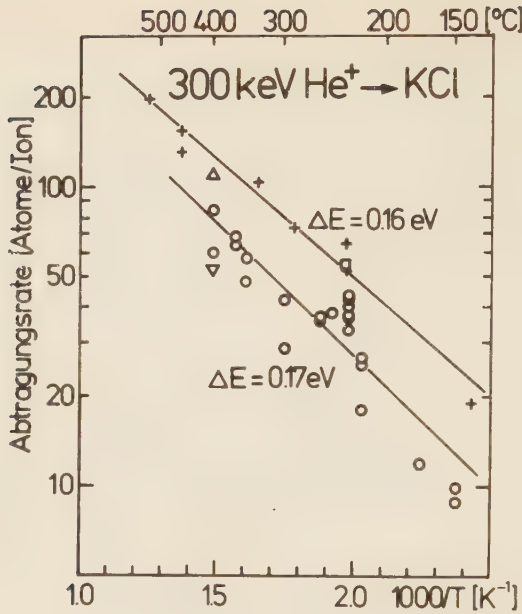


Abb.22b:

Zerstäubung von KCl durch Heliumionen

Einkristallzerst.

(+) in 100 -Richtung
(□) in Random-Richtung

Folienzerstäubung

(○) mit 300 keV He

(Δ) " 200 keV He

(▽) " 150 keV He

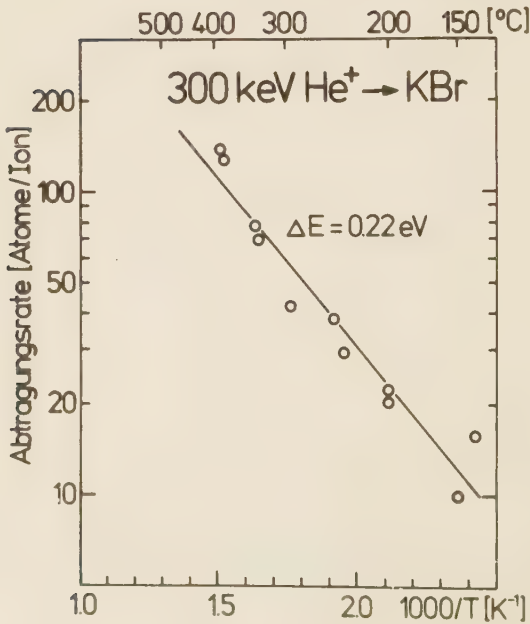


Abb.22c:

Zerstäubung von KBr durch Heliumionen.

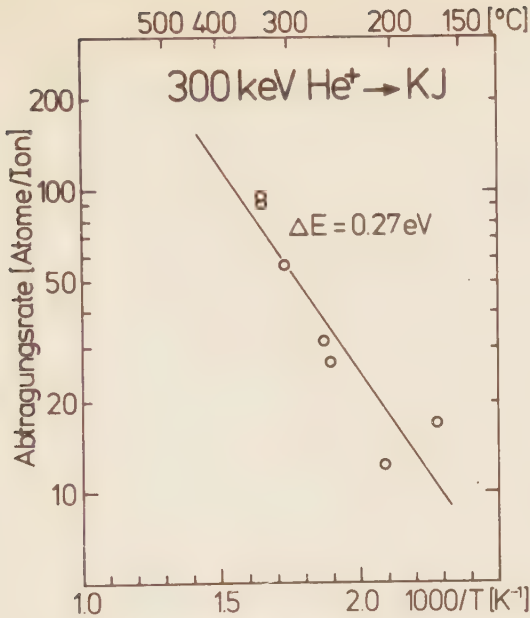


Abb. 22d:

Zerstäubung von KJ durch Heliumionen.

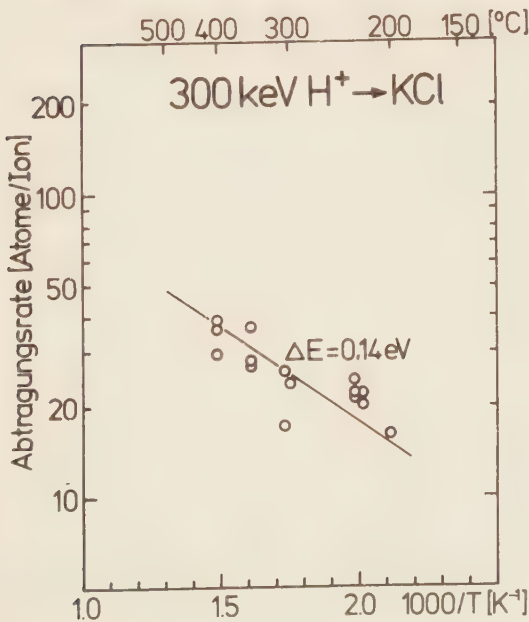


Abb. 22e:

Zerstäubung von KCl durch Wasserstoffionen.

3.3.3 Diskussion

Die Arrheniusdiagramme der Abb.22 und die Daten in Tabelle I belegen folgende wichtige Eigenschaften des Alkalihalogenid-Sputterings durch energetische, schwere Ionen:

- (1) Die Abtragungsraten sind um Größenordnungen höher als vergleichbare Ergebnisse an Metallen und Halbleitern /62,63/ oder theoretische Werte nach dem Stoßkaskadenmodell berechnet /48,64/.
- (2) Die Abtragungsraten sind auf keinen Fall proportional zur nuklearen Abbremsung sondern eher zur elektronischen.
- (3) Die Abtragungsraten sind temperaturabhängig, was auf einen thermisch aktivierten Prozeß schließen läßt.

Abtragungsraten von 200 Atomen/Ion, wie sie hier z.B. für 300 keV He^+ -Beschuß von KCl-Einkristallen gefunden wurden, sind bisher noch an keinem anderen Ion-Target-System gemessen worden ausgenommen an Metallen so nahe am Schmelzpunkt, daß es nicht mehr sinnvoll erscheint, dabei von Abtragung durch Bestrahlung zu sprechen /65/. Während die Ergebnisse von NAVINSEK /10/ für Alkalihalogenidsputtering durch Argonionen nicht zu sehr von der Stoßkaskadentheorie /48,49/ abweichen und kürzlich so interpretiert wurden /15,66/, widersprechen die vorliegenden Daten dieser Theorie gänzlich. Die von ihr geforderte Proportionalität der Abtragungsraten zum nuklearen Bremsvermögen (siehe Beziehung (16) auf S.37) bedeutete, daß die Zerstäubungsrate von KCl für 70 keV Ar^+ -Ionen etwa doppelt so groß wäre wie die für 300 keV Ar^+ -Ionen. Die experimentell gefundenen Werte für Argonionen (Abb.22a) zeigen jedoch ein genau entgegengesetztes Verhältnis. Ebenso dürfte nach der Theorie die Sputterrate für 300 keV He^+ -Ionen nur ca. ein Sechshundertstel der 70 keV Ar^+ -Abtragsrate betragen, während sie

in Wirklichkeit sogar etwas größer ist als diese. Vergleicht man dagegen die in Tabelle II zusammengestellten Abtragsraten mit dem zugehörigen elektronischen Bremsvermögen, so findet man hier eine gute Proportionalität vor allem, wenn man berücksichtigt, daß die theoretischen Daten für das elektronische Bremsvermögen von He^+ ungefähr einen Faktor 1,5 zu klein sind (siehe Kapitel 3.4). Diese Proportionalität der Abtragsraten zum elektronischen Bremsvermögen legt den Schluß nahe, daß der Abtragungsprozess von Ionenkristallen durch schwere, energetische Ionen elektronischer Natur sein muß, ähnlich wie bei der Abtragung von Alkalihalogeniden durch Elektronen und Photonen /57, 61, 67-70/. Aber auch die Zunahme der Abtragsraten mit der Temperatur ist nicht aus der Stoßkaskadentheorie zu erklären und wurde auch bei Sputterexperimenten an polykristallinen Metallen und Halbleitern nicht beobachtet. An Kupfer-Einkristallen haben J.J.Ph. ELICH u.a. /72/ eine Temperaturabhängigkeit der Abtragsraten gefunden (maximale Änderung 12%), die jedoch aus der Temperaturabhängigkeit des gechannelten Anteils der abtragenden Ionen zu erklären ist. Die gechannelten Ionen tragen nämlich nicht zur Abtragung bei, da sie keine Stoßfolgen auslösen können /71,72/. Im Gegensatz dazu wurde hier an Einkristallen eine höhere Zerstäubungsrate gemessen. Dieses Verhalten steht, bei dem hier vorgeschlagenen Abtragungsmechanismus, damit in Einklang, daß im Falle des Channeling ein größerer Anteil der Teilchenenergie in elektronischen Prozessen abgegeben wird.

Zur Erklärung der Abtragung von Alkalihalogeniden durch Elektronen und Photonen /57,61,66-70/ wird der von POOLEY /73,74/ und HERSH /75/ entwickelte Mechanismus der Defekterzeugung in Ionenkristallen herangezogen. Die Grundlage dieses Prozesses ist eine elektronische Anregung der Halogenionen dieser Kristalle. Bereits die Proportionalität

der hier gemessenen Abtragungsraten zum elektronischen Bremsvermögen legt nahe, daß dieser Mechanismus auch bei der Abtragung von Alkalihalogeniden durch schwere Ionen vorliegt.

Der Mechanismus ist im Zusammenhang mit der Defekterzeugung in Ionenkristallen bereits von mehreren Autoren /66, 76/ ausführlich diskutiert worden. Deshalb sollen hier nur die für die Abtragung wichtigen Prozesse kurz beschrieben werden.

- Einfallende ionisierende Strahlung überträgt Energie auf die Halogenionen, indem sie ein Elektron direkt oder indirekt in einen gebundenen, angeregten Zustand hebt. Diesen Zustand stellt man sich als ein Loch in der p-Schale und ein Elektron in der s-Schale im Potential eines neutralen Halogens und einer negativen Ionenleerstelle vor.
- Der neutrale Halogenrumpf bildet mit dem benachbarten Halogenion ein X_2^- -Molekülion auf zwei Gitterplätzen. Die Achse dieses Molekülions ist parallel zur $\langle 100 \rangle$ -Achse des Kristallgitters. Man nennt einen derartigen Defekt auch V_K -Zentrum und die elektronische Anregung gebundenes Exciton.
- Das gebildete Exciton kann nun strahlungslos zerfallen. Die Wahrscheinlichkeit für strahlungslosen Zerfall des Excitons in KCl und KBr ist im untersuchten Temperaturgebiet von 300 K aufwärts nach Berechnungen von POOLEY /73/ gleich Eins und für KJ annähernd Eins.
- Die bei diesem Zerfall freiwerdende Energie wird als kinetische Energie auf die beiden Halogene übertragen. Nach Berechnungen von SMOLUCHOWSKI u.a. /76/ ist diese Energie für KCl ungefähr 9 eV. Diese Energie reicht aus, um über eine Stoßfolge entlang der Halogenkette in $\langle 110 \rangle$ -Richtung ein Frenkelpaar (getrenntes H- und F-Zentrum) zu bilden. Die erforderliche Mindestenergie

zur Erzeugung eines Frenkelpaares aus einem V_K -Zentrum ist 4,9 eV, so daß bei symmetrischer Verteilung der Energie auf die beiden Cl-Ionen nicht zwei Frenkelpaare entstehen können. Da jedoch das V_K -Zentrum, selbst aufgrund der Nullpunktsschwingung, ca. ein Drittel der Zeit etwa um 0,12...0,15 Å von der idealen Gitterposition entfernt ist, ist es auch sehr wahrscheinlich, daß die beim strahlungslosen Zerfall des Excitons freiwerdende Energie asymmetrisch auf die beiden Cl-Ionen übertragen wird, also in einer Richtung ein Frenkelpaar gebildet werden kann. Im Hinblick auf den Sputtermechanismus läßt sich dieser sog. POOLEY-Mechanismus wie folgt erweitern:

Geschieht dieser strahlungslose Zerfall nun in der Nähe der Oberfläche, so kann die daraus resultierende <110>-Stoßfolge die Oberfläche schneiden und ein Halogenatom verläßt den Kristall. Das verbleibende Alkalimetallatom wird anschließend durch Diffusion und thermische Verdampfung abgetragen.

Es liegt auf der Hand, daß dieser Abtragungsmechanismus die gefundene Proportionalität der Abtragungsraten zum elektronischen Bremsvermögen erklärt. Auch die bisher einzigen, veröffentlichten Absolutmessungen der Abtragungsraten von Alkalihalogeniden durch schwere Ionen von NAVINSEK /10/ schließen sich, bei der Annahme einer Proportionalität der Zerstäubungsraten zum elektronischen Bremsvermögen, gut an die vorliegenden Daten an. Das ist ganz eindeutig aus der Tabelle III zu erkennen, in der die Ergebnisse der Abtragungsmessungen an KCl durch Argonionen von NAVINSEK /10/ und der vorliegenden Arbeit für eine Temperatur von 370 K mit den zugehörigen Energieverlusten verglichen werden. D.h. alle bisherigen Zerstäubungsratenmessungen an Alkalihalogeniden weisen auf den Abtragungsmechanismus über elektronische Anregung hin.

TABELLE III: Vergleich des elektronischen und nuklearen Bremsvermögens von KCl für Argonionen mit den Zerstäubungsraten

Ar [keV]	S_e [eV·Å ²]	S_n [eV·Å ²]	A [Atome/Ion]	Quelle
2	90	1020	1	NAVINSEK /10/
10	200	1330	2	"
70	524	1200	4	eigene Messung
300	1083	723	10	"

Dieser wird auch durch den Nachweis erhöhter Austrittswahrscheinlichkeit der gesputterten Atome in <110>-Richtung /17/ bestätigt, da der Excitonenzerfall Stoßfolgen in <110>-Richtung auslöst. Die Tabelle III zeigt auch, daß sich die Annahme von MIYAGAWA /15/ und ITOH /66/ einer Proportionalität der Zerstäubungsraten zum nuklearen Bremsvermögen in Anbetracht der neuen Daten nicht aufrecht erhalten läßt.

Die unterschiedliche Abtragung von Alkaliatomen und Halogenatomen, die bei Zimmertemperaturbestrahlungen gefunden wurden (Abb.20), bestätigen das im POOLEY-Mechanismus geforderte Abtragen über Halogenstoßfolgen. Die Tatsache, daß Brom und Jod bereits bei Zimmertemperatur abgetragen werden, während Kalium stehen bleibt, bedeutet nämlich nichts anderes als, daß die Halogene durch die vom Ionenbeschuß ausgelösten Stoßfolgen abgetragen werden und die Kaliumatome erst bei genügend hoher Temperatur durch thermische Verdampfung abgelöst werden. Daß dies mit der gleichen Rate wie die Halogenabtragung geschieht und die Aktivierungsenergien für die Br und KBr-Abtragung bzw. die J und die KJ-Abtragung dieselben sind (siehe Abb.23), spricht dafür, daß die Halogenabtragung der ratenbestimmende Prozess ist. Eine Folge dieser Art der Abtragung

ist die Anreicherung der Oberflächen mit Alkalimetallatomen bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen, die von PALMBERG u. RHODIN /77/ durch Auger-Elektronenspektroskopie nach Elektronenbeschuß von KCl bereits beobachtet worden ist. Ein Vergleich der hier gefundenen Oberflächenzerstäubungsraten mit den Kaliumabdampfraten unter der Annahme einer reinen Kaliumoberfläche zeigt, daß die Abdampfraten erst oberhalb von 380...390 K die Größe der Zerstäubungsraten erreichen und von dieser Temperatur an größer wären als die Halogenabtragung. Diese Tatsache ist in Abb.23 für die KBr-Abtragung graphisch dargestellt. Die gemessenen Zerstäubungsraten sind zum Vergleich mit den Abdampfraten von Kalium über die Stromdichte in Einheiten von Atomen/cm².s umgerechnet. Die Abbildung zeigt, daß die Bromzerstäubung bis herab zu Zimmertemperaturbestrahlung auf der Arrheniusgeraden liegen, während die Kaliumabtragung bei etwa 400 K in die Abdampfraten einmündet.

Da man also erst oberhalb dieser Temperatur von 400 K eine gleichmäßige Abtragung der beiden Komponenten erwarten kann, sind die Aktivierungsenergien aus den Meßdaten über 400 K berechnet worden.

Die in Abb.22b dargestellte unterschiedliche Abtragung von KCl-Einkristallen und -Polykristallschichten läßt sich ebenfalls einfach durch den Halogenstoßfolgen-Mechanismus erklären. Da nämlich in Einkristallen die Stoßfolgen größere Längen erreichen, sind auch die Abtragungsraten größer. Auch der Einfang von Excitonen in Leerstellen /78/, die in polykristallinen Schichten in größerer Dichte vorhanden sind, könnte den Unterschied in der Abtragungsrate verursachen. Aber auch diese Erklärung setzt den Excitonenzerfall als Auslösemechanismus für die Abtragung voraus.

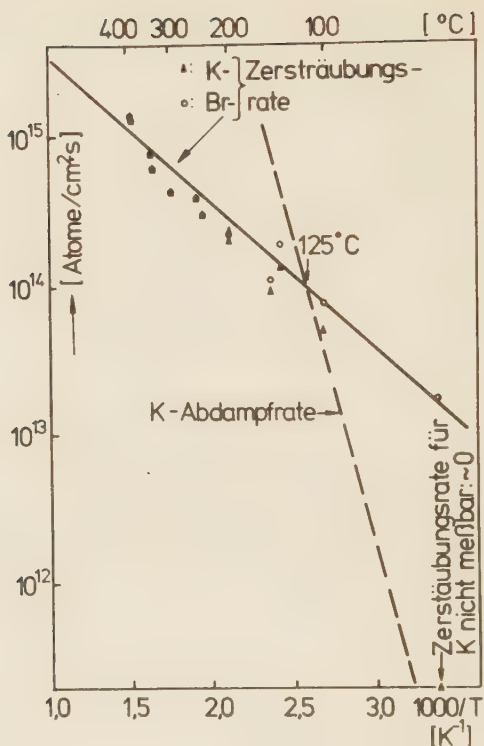


Abb.23: Kaliumverdampfung und Zersträubung von Kalium und Brom unter Heliumbeschuß mit $1,15 \mu\text{A}/\text{cm}^2$. Ab etwa 400 K wäre die Abdampfrate größer als die Bromzersträubung.

Die gefundenen Aktivierungsenergien für die KCl-Abtragung durch die verschiedenen Ionen liegen im Mittel bei 0,15 eV mit einer Abweichung von $\pm 0,02$ eV. Das ist jedoch genau der Fehler, mit dem auch die Einzelmessung der Aktivierungsenergien behaftet ist. Es zeigt sich also, daß die Aktivierungsenergien spezifisch sind für das jeweilige Alkali-halogen und unabhängig von der Art der Beschußionen: Es wurde eine Zunahme der Aktivierungsenergien von 0,15 eV

für KCl, 0,22 eV für KBr bis zu 0,27 eV für KJ gefunden.

Die Absolutwerte und der Gang der gemessenen Aktivierungsenergien decken sich nicht mit den aus der Temperaturabhängigkeit der Frenkelpaarerzeugung gefundenen Aktivierungsenergien oder den Aktivierungsenergien für die Diffusion von V_K -Zentren und H-Zentren. Aus diesem Grunde ist die Diffusion von Defekten, insbesondere von Halogenzwischen-gitteratomen (H-Zentren), wohl nicht für die Abtragung verantwortlich. Das ist aus dem Gang der bisher bekannten Aktivierungsenergien, die in Tabelle IV zusammengestellt sind, ersichtlich. Allerdings sind diese Aktivierungsenergien alle weit unter Zimmertemperatur gemessen worden und differieren stark von Messung zu Messung. Daß die bei tiefen Temperaturen gefundenen Aktivierungsenergien nicht ohne weiteres auch für hohe Temperaturen gültig sind, zeigt die Messung der Aktivierungsenergie für Frenkelpaarerzeugung in KJ durch SONDER /80/. Für den Temperaturbereich 110-170 K fand er eine Aktivierungsenergie von 0,01 eV und für den Temperaturbereich 80-100 K von 0,15 eV. Dabei scheint die Temperaturabhängigkeit von sekundären Prozessen, wie Defektrekombination und Defekteinfang, eine bedeutende Rolle zu spielen.

Eine quantitative, theoretische Berechnung der Aktivierungsenergien ist leider nicht möglich, da die Kenntnisse über das Exciton und sein Zerfallsschema noch zu gering sind. Eine qualitative Erklärung für die Zunahme der gemessenen Aktivierungsenergien mit dem Halogenatomdurchmesser liefert ein Vergleich der Niveauschemata der Excitonen nach theoretischen Abschätzungen von POOLEY /82/ (siehe dortige Figur 7). Daraus folgt, daß die Aktivierungsenergie für den strahlungslosen Zerfall des Excitons von Chlor über Brom zum Jod hin ansteigt. Dieses Verhalten wurde auch experimentell von POOLEY u. RUNCIMAN /82/ bestätigt; und

TABELLE IV: Aktivierungsenergien für Diffusion und Erzeugung von Defekten

	KCl	KBr	KJ
Diffusion von V_k - und H-Zentren			
V_k [eV]	0,53 /86/ 0,54 /87/	- -	0,273 /88/ 0,28 /88/
[K]	173 /89/	143 /89/	93 /89/
H [eV]	0,04 /90/ 0,075 /93/ 0,07 /94/	0,1 /91/ 0,09 /93/ -	0,132 /92/ - -
Temperaturabhängigkeit der Frenkelpaarerzeugung			
F H [eV]	0,07 /94/ -	0,03 /75/ 0,025 /79/	0,01 /94/ 0,15 /94/ T 100 K
Strahlungsloser Excitonenzerfall			
e [eV]	0,0073/82/ 0,15 /83/	0,04 /82/ 0,135 /83/	0,11 /82/ 0,11 /83/
Excitonen-Diffusion (Theorie)			
e [eV]	0,44 /85/	-	-
Zerstäubungsexperimente			
[eV]	0,27 /67/ 0,15 /x /	0,28 /67/ 0,22 /x /	0,22 /67/ 0,27 /x /

/x / Ergebnisse der vorliegenden Arbeit.

zwar durch Messung der Intensitätsabnahme und Lebensdauerverkürzung der Lumineszenzstrahlung von Excitonenzerfällen mit steigender Temperatur. Die Lumineszenz und der strahlungslose Zerfall des Excitons sind bekanntlich konkurrierende Prozesse. Vergleicht man jedoch die experimentellen Daten, so findet man auch hier eine relativ schlechte Übereinstimmung zwischen den einzelnen Messungen. SWANK u. BROWN /83/ haben ebenfalls die Lumineszenzunterdrückung in Alkalihalogeniden untersucht und finden Aktivierungsenergien von 0,15 eV für KCl, 0,135 eV für KBr und 0,11 eV für KJ, während POOLEY u. RUNCIMAN /82/ 0,007 eV für KCl, 0,04 eV für KBr und 0,11 eV für KJ fanden. Doch auch diese Werte sind durchweg bei Temperaturen unter Zimmertemperatur gemessen und es erscheint zweifelhaft, ob sie daher mit den vorliegenden Hochtemperaturmessungen vergleichbar sind.

Die in dieser Arbeit gemessenen Aktivierungsenergien liegen alle höher; 0,15 eV für KCl, 0,22 eV für KBr und 0,27 eV für KJ. Auch Y. Al JAMMAL u. P.D. TOWNSEND /66/ haben aus Elektronen-Sputtermessungen Aktivierungsenergien bestimmt, die etwa so groß sind wie die vorliegenden, nämlich 0,27 eV, 0,28 eV und 0,22 eV für KCl, KBr und KJ. Diese Aktivierungsenergien sind jedoch aus nur vier Abtragungsratenmessungen bestimmt. Letztere Autoren schreiben die Aktivierungsenergien der Abdampfung von einzelnen Kaliumatomen zu, die auf einem ungestörten Alkalihalogengitter sitzen. Ihre Rechnungen dazu ergeben Aktivierungsenergien, die alle im Bereich von 0,2 eV $\pm 5\%$ liegen, während die Meßwerte für die einzelnen Alkalihalogenide sich um 30% unterscheiden (Fehler 10%). Daß nicht die Alkaliverdampfung der ratenbestimmende Prozess ist, konnte in dieser Arbeit aufgrund des Verlaufs der Abtragungsraten unterhalb von 400 K gezeigt werden (siehe z.B. Abb.23).

ITOH und SAIDOH /79/ folgern aus der von ihnen in Na^+ -dotiertem KBr gefundenen Abhängigkeit der Wechselwirkung von erzeugten Defekten mit den Dotierungen von der Temperatur, daß die Stoßfolgenlänge mit der Temperatur zunimmt, und zwar mit einer Aktivierungsenergie von 0,025 eV. Diese ist jedoch um eine Größenordnung kleiner als die experimentellen Werte.

Die gemessenen Aktivierungsenergien könnten auch von der Diffusion der Excitonen herrühren, die nach HELLER und MARCUS /84/ in idealen Kristallen bis zu $1/\mu$ Diffusionslänge erreichen kann. Es liegen bisher jedoch keine Messungen der Aktivierungsenergien für Excitonenwanderung vor. Lediglich theoretische Werte von SONG /85/ liegen vor (siehe Tabelle IV). Er vergleicht diese Werte mit Aktivierungsenergien, die aus Elektronenzerstäubungsdaten /67,68/ gewonnen sind. Die Übereinstimmung ist jedoch nicht sehr gut. Von den in dieser (vorliegenden) Arbeit untersuchten Alkalihalogeniden gibt SONG nur für KCl eine Aktivierungsenergie an, die mit 0,44 eV erheblich größer ist als die hier zu 0,15 eV gemessene.

Faßt man alle bis jetzt bekannten Fakten und Modelle zusammen, so folgt, daß eine befriedigende theoretische Beschreibung der Zerstäubung von Alkalihalogeniden noch nicht möglich ist. Das gilt sowohl für die gemessene Temperaturabhängigkeit als auch für die absoluten Zerstäubungsraten. Man kann jedoch folgende Eigenschaften für die Zerstäubung von Alkalihalogeniden durch 70-300 keV-Ionen feststellen:

- (i) Die Abtragung geschieht in zwei Schritten. Zuerst verlassen Halogenatome den Festkörper, und die Alkaliatome werden in einem zweiten Schritt durch thermische Verdampfung abgetragen.
- (ii) Die Zerstäubungsraten sind temperaturabhängig und folgen einem Arrheniusgesetz mit Aktivierungsenergien von 0,15 - 0,27 eV. Die Aktivierungsenergien sind unabhängig vom abtragenden Ion und nehmen mit dem Halogenatomdurchmesser zu (es wird angenommen, daß sie charakteristisch für die Excitonendiffusion sind).
- (iii) Die Zerstäubungsraten sind proportional zum elektronischen Bremsvermögen.
- (iv) Einkristalle werden schneller abgetragen als polykristalline Schichten.
- (vi) Von $1 - 14 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ ist die Zerstäubung strom-dichteunabhängig.

Diese Eigenschaften der Oberflächenzerstäubung schließen den Abtragungsmechanismus über elastische Stoßfolgen, wie er in Metallen und Halbleitern vorliegt, aus. Es scheint vielmehr der gleiche Mechanismus vorzuliegen wie bei der Abtragung der Alkalihalogenide durch Elektronen. Es ist anzunehmen, daß der POOLEY-HERSH-Mechanismus dabei eine wesentliche Rolle spielt. Mit Sicherheit konnte festgestellt werden, daß primär das Halogen abgebaut wird.

3.4 Bremsvermögen von KCl

Aus den bei den Sputtermessungen an KCl-Aufdampfschichten gewonnenen Rutherford-Rückstreuenspektren (Abb. 18a) läßt sich in relativ einfacher Weise das Bremsvermögen von KCl für Wasserstoff bzw. Helium bestimmen. Die Flanken des Spektrums entsprechen der Rückstreuenergie von der Oberfläche und der Rückseite der Aufdampfschicht. Da auch die Dicke der Schicht bekannt ist, kann man daraus das Bremsvermögen berechnen. Dazu wurde das in Abschnitt 2.4 erläuterte Computerprogramm verwendet. Es wurde dazu so modifiziert, daß nicht die Tiefe berechnet wurde, aus der die Teilchen mit einer bestimmten Rückstreuenergie in den Detektor gelangen, sondern die Formel (11) für die elektronische Stoppingpower wurde an die vorgegebenen Werte von Targetdicke und Rückstreuenergie mit Hilfe eines Korrekturfaktors angefügt. Dabei ergab sich, daß die Stopping-Power für Wasserstoff in KCl im gemessenen Energie-Intervall einen Faktor $1,2 \pm 0,05$ und für Helium einen Faktor $1,56 \pm 0,05$ zu klein von der theoretischen Formel (11) wiedergegeben wird. In Abb. 24 sind die theoretischen und die korrigierten Stopping-Power-Werte dargestellt. Der Befund, daß in diesem Energiebereich das α -Teilchen-Bremsvermögen von der Theorie zu niedrig vorausgesagt wird, deckt sich auch mit ähnlichen Untersuchungsergebnissen anderer Autoren, z.B. denen von LIN u.a. /95,96/.

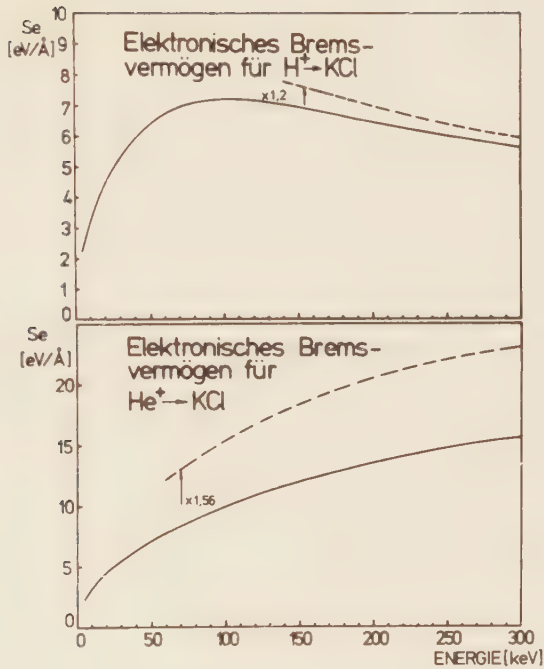


Abb. 24: Elektronisches Bremsvermögen von KCl für H^+ und He^+ nach Formel (11) (durchgezogene Kurven). Die gestrichelten Kurven geben das mit dem experimentell gefundenen Korrekturfaktor versehene Bremsvermögen wieder.

3.5 Zusammenhang zwischen Zerstäubung und anomalem Strahlenschadenverlauf

Das in Abschnitt 2.4 beschriebene anomale Strahlenschadenverhalten von KCl-Kristallen unter He^+ -Beschluß findet durch die in Abschnitt 3.3 wiedergegebenen Zerstäubungsergebnisse eine einfache Erklärung. Der Strahlenschadenverlauf oberhalb 400 K (Abb.12) kommt folgendermaßen zustande:

- Zu Beginn der Bestrahlung erhöht sich die Defektkonzentration im Kristall mit zunehmender Dosis, da die anfängliche Abtragung von KCl klein ist, vermutlich infolge adsorbierter Oberflächenverunreinigungsschichten. Die Wirksamkeit solcher Oberflächenschichten wird durch das in Abschnitt 3.3.1 gezeigte Fehlen der Abtragung bei goldbedampften Kristallen bestätigt.
- Nach einer Dosis von ca. $5 \cdot 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ erreicht die Abtragung ihre endgültige Größe (Abb.19b).
- Die obere Kristallschicht mit hoher Strahlenschadenkonzentration wird nun mit hoher Geschwindigkeit abgetragen. Dadurch sieht der analysierende Ionenstrahl zunehmend Schichten mit geringerer Defektkonzentration, was die Abnahme von $X_{\min}$ in Abb.11 verursacht.
- Nach Abtragen der defektreichen Schicht kann der Strahlenschaden wieder zunehmen, weil die Abtragung nun langsamer vorsichgeht. Das kann eine Folge davon sein, daß nun weniger defektreiche Schichten abgetragen werden oder daß sich Verunreinigungsstrukturen ausbilden. Solche Erscheinungen tauchen bei fast allen Sputterexperimenten auf und sind auch im vorliegenden Fall in Abb.17b festgestellt worden.

Der stetige Verlauf der Strahlenschadenkurve bei der 323 K Bestrahlung (Abb.12) ist darauf zurückzuführen, daß bei dieser Temperatur und der verwendeten Stromdichte keine Abtragung stattfindet (experimentelle Befunde in Tabelle I). D.h., die

adsorbierte Verunreinigungsschicht wird nicht abgetragen. Die in Abb.18 zu sehenden großen Blasen sind ein Beweis für die Ansammlung von Defekten unter dieser Oberflächenschicht. Aufgrund des Defektbildungs- und Abtragungsmechanismus über Halogenstoßfolgen ist anzunehmen, daß es sich dabei um Halogen-zwischengitteragglomerate handelt. Es wäre aber auch möglich, daß sich ein Teil des implantierten Heliums ausgeschieden hat. Heliumblistering tritt jedoch in Metallen für eine Energie der Heliumionen von 300 keV erst bei höheren Dosen auf /97/.

Aus den Abtragungsmessungen mit Protonen geht hervor, daß die Zerstäubung erst bei einer Dosis von ca. $0,5 \cdot 10^{17} \text{ H}^+/\text{cm}^2$ ihre volle Größe erreicht (vergleiche Abb.19c). Das erklärt das Fehlen eines Minimums in der Strahlenschadenkurve Abb.14 und die angedeutungsweise Ausbildung eines Plateaus bei $0,5 \dots 1 \cdot 10^{17} \text{ H}^+/\text{cm}^2$.

Das Auftreten von Minima in den Messungen von HOLLIS u.a. /5,6/ bereits bei Bestrahlungstemperaturen unterhalb von Raumtemperatur konnte in dieser Arbeit nicht bestätigt werden. Der Befund von HOLLIS u.a. könnte auf eine lokale Erwärmung des Kristalls an der Stelle des Strahlflecks zurückzuführen sein.

Aufgrund der hohen Defekterzeugungsraten und der in dieser Arbeit zum erstenmal gemessenen großen Zerstäubungsraten durch H^+ - und He^+ -Ionen erscheinen Channeling-/Blocking-Experimente mit Rutherford-Rückstreuung zur Gitterpositionsbestimmung von Fremdatomen in Alkalihalogenidkristallen nicht leicht durchführbar. Die Ergebnisse der Arbeit zeigen aber auch, daß die verwendeten experimentellen Methoden gute Hilfsmittel zur Untersuchung der verschiedenen Bestrahlungsphänomene an Ionenkristallen sind.

4. Zusammenfassung

Beim Beschuß von Alkalihalogeniden mit He^+ -Ionen zeigt sich ein anomales Verhalten des Kanalführungseffektes:

Er nimmt zu Beginn der Bestrahlung wie erwartet ab, um dann (bei Bestrahlungstemperaturen oberhalb von 400 K) bei einer Dosis von ca. $6 \cdot 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ wieder zuzunehmen. In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, daß sich dieses Verhalten durch die Oberflächenzerstäubung dieser Kristalle erklären läßt:

- Die Strahlenschadenminima treten bei gleicher Dosis auf wie das Einsetzen der Oberflächenzerstäubung.
- Die Zerstäubungsraten sind groß genug, einen derartigen Abnahmeeffekt zu erklären.
- Das Fehlen von Strahlenschadenminima unterhalb 400 K deckt sich mit dem Fehlen der Abtragung bei der entsprechenden Bestrahlungstemperatur (He^+ -Bestrahlung) bzw. bis zur gemessenen totalen Dosis (H^+ -Bestrahlung).

Die im Temperaturbereich von 295-800 K gemessenen Oberflächenzerstäubungsraten von KCl, KBr und KI durch 70-300 keV H^+ -, He^+ - und Ar^+ -Ionenbeschuß können nicht wie bei Metallen und Halbleitern mit der Stoßkaskadentheorie erklärt werden. Vielmehr liegt hier derselbe Mechanismus vor wie bei der Zwischengitteratomerzeugung und Oberflächenzerstäubung durch Elektronen in Alkalihalogeniden (POOLEY-HERSH Mechanismus). Die Alkalihalogenid-Oberflächenzerstäubung ist vermutlich die Folge des strahlungslosen Zerfalls elektronischer Anregung (gebundene Excitonen) und der daraus resultierenden Auslösung von Stoßfolgen entlang der Halogenketten. Sie geht also in zwei Schritten vonstatten: (1) Abtragung der Halogene durch $\langle 110 \rangle$ -Stoßfolgen und (2) thermische Verdampfung der Alkaliatome. Die extreme Größe und die Temperaturabhängigkeit der Abtragungsraten wird auf die Diffusion von Excitonen zurückgeführt.

Das in dieser Arbeit experimentell bestimmte Bremsvermögen von KCl für H^+ - und He^+ -Ionen liegt um einen Faktor 1,2 bzw. 1,56 höher als nach der Theorie berechnet wird.

5. Literaturverzeichnis

- / 1/ K. Morita, K. Tachibana und N. Itoh, Phys. Letters 33 A (1970) 257.
- / 2/ H.J. Matzke, phys. stat. sol. (a)8 (1971) 99.
- / 3/ F. Fujimoto, K. Komaki und H. Nakayama, phys. stat. sol. (a)5 (1971) 725.
- / 4/ K. Ozawa, F. Fujimoto, K. Komaki, M. Mannami und T. Sakurai, phys. stat. sol. (a)9 (1972) 323.
- / 5/ M.J. Hollis, Phys. Rev. B, 8 (1973) 931.
- / 6/ M.J. Hollis, C.S. Newton und P.B. Price, Phys. Letters, 44A (1973) 243.
- / 7/ P.B. Price, J.S. Williams und J.C. Kelly, Rad. Effects, 19 (1973) 203.
- / 8/ C.S. Newton, R.B. Alexander, E.J. Clark, H.J. Hay und T.B. Treacy, VI.th Conf. on Atomic Collisions in Solids, Amsterdam, 1975.
- / 9/ G.M. Batanov, Sov. Phys.-Solid State, 4 (1963) 1306.
- /10/ B. Navinšek, J. Appl. Phys., 36 (1965) 1678.
- /11/ Z. Jurela, Rad. Effects, 13 (1972) 167.
- /12/ I.A. Abroyan und V.P. Lavrov, Sov. Phys.-Solid State, 4 (1963) 2382.
- /13/ U.A. Arifov, S. Gaipov und R.R. Rakhimov, Rad. Effects, 19 (1973) 151.
- /14/ G.P. Können, J. Grosser, A. Haring, A.E. De Vries und J. Kistemaker, Rad. Effects, 21 (1974) 171.
- /15/ S. Miyagawa, J. Appl. Phys., 44 (1973) 5617.
- /16/ R.P. Stein, Proc. 5th Int. Conf. on Ionization Phenomena in Gases (North Holland Publ. Comp., Amsterdam, 1962) Vol. 1, p. 118.
- /17/ H.M. Windawi und C.B. Cooper, Phys. Letters, 43A (1973) 491.
- /18/ J. Richards und J.C. Kelly, Rad. Effects, 19 (1973) 185.
- /19/ J.C. Kelly und M.C.E. Petersen, Phys. Letters, 22 (1966) 295.

- /20/ D.S. Gemmel, Rev. Mod. Phys., 46 (1974) 129.
- /21/ J. Lindhard, Mat. Phys. Medd. Dan. Vid. Selsk., 34
No. 14 (1964).
- /22/ J.P. Biersack, Z. Physik, 211 (1968) 495.
- /23/ J. Lindhard und M. Scharff, Phys. Rev., 124 (1961) 128.
- /24/ H.A. Bethe, Ann. Physik, 5 (1930) 325.
- /25/ C. Varelas und J.P. Biersack, Nucl. Instr. Meth., 79
(1970) 213.
- /26/ E. Bøgh, Can. J. Phys., 46 (1968) 653.
- /27/ K. Tachibana, K. Morita und N. Itoh, Solid State Comm.,
9 (1971) 1425.
- /28/ H.J. Matzke und J.A. Davies, J. Appl. Phys., 38 (1967) 805.
- /29/ R.B. Alexander, P.T. Callaghan und J.M. Poate, Phys. Rev.
B, 9 (1974) 3022.
- /30/ L.C. Feldman und D.E. Murnick, Phys. Rev. B, 5 (1972) 1.
- /31/ E.N. Kaufmann, J.M. Poate und W.M. Augstyniak, Phys. Rev. B,
7 (1973) 951.
- /32/ F.H. Eisen und E. Uggerødj, Rad. Effects, 12 (1972) 233.
- /33/ R. Behrisch, Can. J. Phys., 46 (1968) 527.
- /34/ B.M.U. Scherzer, Dissertation, Technische Hochschule
München (1969).
- /35/ A. Fontell, E. Arminen und E. Leminen, Rad. Effects,
12 (1972) 255.
- /36/ M. Mannami, T. Sakurai, K. Ozawa, F. Fujimoto und K.
Komaki, phys. stat. sol., 38 (1970) K1.
- /37/ J.H. Barrett, Phys. Rev. B, 3 (1971) 1527.
- /38/ W.J.L. Buyers und T. Smith, J. Phys. Chem. Solids,
29 (1968) 1051.
- /39/ Sh. Roth und R. Sizmann, Rad. Effects, 20 (1973) 43.
- /40/ K. Izumi, J. Phys. Soc. Japan, 26 (1969) 1451.
- /41/ D.R. Westervelt, Acta metallurgica, 1 (1953) 755.
- /42/ E. Aerts, S. Amelinckx und W. Dekeyser, Acta metallurgica,
7 (1959) 171.
- /43/ L.W. Hobbs und A.E. Hughes, Nature, 252 (1974) 383.
- /44/ K. Kobayashi, Phys. Rev., 102 (1956) 348.

- /45/ R. Smoluchowski, Proc. Int. Conf. on Peacefull Uses of Atomic Energy (Unitet Nations, 1956) Vol. 7, p.676.
- /46/ I. Agarbiceanu und I. Teodorescu, Phil Mag., 19 (1972) 82.
- /47/ L.C. Arsenovici und P.D. Townsend, Phil. Mag., 25 (1972) 381.
- /48/ P. Sigmund, Phys. Rev., 184 (1969) 383.
- /49/ R. Weissmann und P. Sigmund, Rad. Effects, 19 (1973) 7.
- /50/ D. Rosenberg und G.K. Wehner, J. Appl. Phys., 33 (1969) 1842.
- /51/ G.K. Wehner, R.V. Stuart und D. Rosenberg, General Mills Annual Report of Sputtering Yields, Report No. 2243 (1961).
- /52/ P. Mertens, Nucl. Instr. Meth., 132 (1976) 307.
- /53/ O. Almen und G. Bruce, Nucl. Instr. Meth., 11 (1961) 257.
- /54/ G. Dupp und A. Scharmann, Z. Physik, 192 (1966) 284.
- /55/ H.E. Rosendaal und J.J.Ph. Elich, Rad. Effects, 19 (1973) 127.
- /56/ P. Dobberstein und L. Henke, Nucl. Instr. Meth., 119 (1974) 611.
- /57/ P.D. Townsend und D.J. Elliott, "Atomic Collision Phenomena in Solids" (North Holland Publ. Comp., Amsterdam, 1970)p.328.
- /58/ I.H. Wilson, "Ion Surface Interaction, Sputtering and related Phenomena" (Gordon and Breach Science Publ., London, 1973) p. 217.
- /59/ N. Hermene, ebenda.
- /60/ A.D.G. Stewart und M.W. Thompson, J. Mat. Sci., 4 (1969) 56.
- /61/ D.J. Elliott und P.D. Townsend, Phil. Mag., 23 (1971) 249.
- /62/ R.J. Mac Donald, Adv. Phys.
- /63/ M.W. Thompson, "Defects and Radiation Damage in Metals" (Cambridge University Press, London, 1969).
- /64/ M.W. Thompson, Phil. Mag., 18 (1968) 377.
- /65/ R.S. Nelson, Phil. Mag., 11 (1965) 291.
- /66/ N. Itoh, Nucl.Instr. Meth. 132 (1976) 201.
- /67/ Y.Al Jammal und P.D. Townsend, J. Phys. C, 6 (1973) 955.
- /68/ Y. Al Jammal, D. Pooley und P.D. Townsend, J. Phys. C, 6 (1973) 247.
- /69/ P.D. Townsend und J.C. Kelly, Phys. Letters, 26A (1968) 138.

- /70/ P.D. Townsend und D.S. Elliott, Phys. Letters, 28A (1969) 587.
- /71/ D. Onderdelinden, Can. J. Phys., 46 (1968) 739.
- /72/ J.J.Ph. Elich, H.E. Roosendaal und D. Onderdelinden, Rad. Effects, 10 (1971) 175.
- /73/ D. Pooley, Proc. Phys. Soc., 87 (1966) 245.
- /74/ D. Pooley, Proc. Phys. Soc., 87 (1966) 257.
- /75/ H.N. Hersh, Phys. Rev., 148 (1966) 928.
- /76/ R. Smoluchowski, O.W. Lazareth, R.D. Hatcher und G.J. Dienes, Phys. Rev. Lett., 27 (1971) 1288.
- /77/ P.W. Palmberg und T.N. Rhodin, J. Phys. Chem. Solids, 29 (1968) 1917.
- /78/ L. Apker und E. Taft, Phys. Rev., 79 (1950) 964, 81 (1951) 814, 83 (1951) 479.
- /79/ N. Itoh und M. Saidoh, J. de Physique, C9 (1973) 101.
- /80/ E. Sonder, Phys. Rev. B, 12 (1975) 1516.
- /81/ E. Sonder und W.A. Sibley, "Point Defects in Solids", (Plenum Press, New York, 1972) Vol. 1, p. 201.
- /82/ D. Pooley und W.A. Runciman, J. Phys. C, 3 (1970) 1815.
- /83/ R.K. Swank und F.C. Brown, Phys. Rev., 130 (1963) 34.
- /84/ W.R. Heller und A. Marcus, Phys. Rev., 84 (1951) 809.
- /85/ K.S. Song, J. de Physique, C9 (1973) 495.
- /86/ T.J. Neubert und T.A. Reffner, J. Chem. Phys., 36 (1962) 2780.
- /87/ F.J. Keller, R.B. Murray, M.M. Abraham und R.A. Weeks, Phys. Rev., 154 (1967) 812.
- /88/ F.J. Keller und R.B. Murray, Phys. Rev. Lett., 15 (1965) 198, Phys. Rev., 150 (1966) 670.
- /89/ C.J. Delbecq, W. Hayes und P.M. Yuster, Phys. Rev., 121 (1961) 1043.
- /90/ A. Behr, H. Peisl und W. Waidelich, Phys. Letters, 24A (1967) 379.
- /91/ W. Fuchs und A. Taylor, Phys. Rev. B, 2 (1970) 3393.
- /92/ M. Ikezawa und T. Kojima, J. Phys. Soc. Japan, 27 (1969) 1551.
- /93/ M. Ueta, J. Phys. Soc. Japan, 23 (1967) 1265.
- /94/ E. Sonder, Phys. Rev. B, 5 (1972) 3259.

- /95/ W.K. Lin, H.G. Olson und D. Powers, J. Appl Phys.,
44 (1973) 3631.
- /96/ W.K. Lin, H.G. Olson und D. Powers, Phys. Rev. B,
8 (1973) 1881.
- /97/ M. Kaminsky, S.K. Das und G. Fenske, Appl. Phys. Letters,
27 (1975) 521.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde im Bereich Kernchemie und Reaktor des Hahn-Meitner Instituts für Kernforschung Berlin GmbH durchgeführt und von diesem finanziert.

Zu besonderem Dank bin ich meinem Arbeitsgruppenleiter Herrn Priv. Doz. Dr. J.P. Biersack verpflichtet, der meine Arbeit durch wertvolle Anregungen und Ratschläge sehr gefördert hat.

Ferner danke ich Herrn Dipl. Phys. U. Morfeld, unter dessen Mitarbeit die Strahlenschadenmessungen entstanden, sowie Frau S. Franke, die mir bei der Datenverarbeitung, der Targetpräparation, den Langzeitbestrahlungen und der Erstellung von graphischen Darstellungen engagierte Hilfe leistete.

Allen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe C-r möchte ich für ihre Hilfsbereitschaft danken.

Lebenslauf

20. Jan. 1942	geboren in 8341 Gföhret, Bayern
1948 - 1953	Grundschulbesuch in 8341 Peterskirchen
1953 - 1962	Besuch des Humanistischen Gymnasiums Passau
1. Okt. 1962 -	Dienst bei der Bundeswehr in Regensburg
30. Sept. 1964	als Soldat auf Zeit
WS 1964	Aufnahme des Physikstudiums an der Freien Universität Berlin
März 1968 -	Durchführung der Diplomarbeit "Aktivierungs-
Nov. 1969	analyse mit schnellen Neutronen" an der Bundesanstalt für Materialprüfung Berlin
1968	Eheschließung mit Renate Rinio
1969	Geburt unserer Tochter Nanna
Nov. 1969	Diplomprüfung
Januar 1970	Beginn der Beschäftigung am Hahn-Meitner Institut für Kernforschung Berlin
1975	Ehescheidung von meiner Frau Renate
1976	Beendigung der Dissertationsarbeit

